(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関 国際事務局





(43) 国際公開日 2004年7月22日(22.07.2004)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 2004/062016 A1

(51) 国際特許分類7:

H01M 8/04, 8/10

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2003/015712

(22) 国際出願日:

2003年12月9日(09.12.2003)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願 2002-378489

2002年12月26日(26.12.2002) ЛР

特願 2002-378488

2002年12月26日(26.12.2002) JP JР

特願2003-169275 特願2003-169860 2003年6月13日(13.06.2003)

2003年6月13日(13.06.2003)

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): ソニー株 式会社 (SONY CORPORATION) [JP/JP]; 〒141-0001 東京都 品川区 北品川6丁目7番35号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

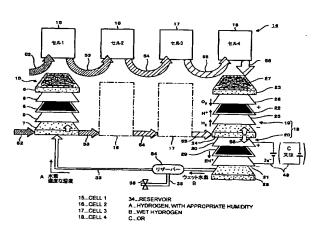
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 金井 千明 (KANAI, Chiaki) [JP/JP]; 〒141-0001 東京都 品川区 北 品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP). 窪田 英吾 (KUBOTA,Eigo) [JP/JP]; 〒141-0001 東京都 品川 区 北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 中村 友之 (NAKAMURA, Tomoyuki); 〒105-0001 東京都港区 虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第一ビ ル9階 三好内外国特許事務所内 Tokyo (JP).

[続葉有]

(54) Title: HYDROGEN GAS HUMIDITY CONTROLLER, FUEL CELL, HYDROGEN GAS HUMIDITY CONTROLLING METHOD, AND HUMIDITY CONTROLLING METHOD OF FUEL CELL

JP

(54) 発明の名称: 水素ガス湿度制御装置、燃料電池、水素ガス湿度制御方法および燃料電池の湿度制御方法



(57) Abstract: A hydrogen gas humidity controller for sustaining the humidity in a fuel cell in an appropriate state constantly by removing excessive moisture from fuel gas or by regulating the moisture thereby performing humidification or dehumidification, a fuel cell employing that hydrogen gas humidity controller, and a hydrogen gas humidity controlling method. Using a moisture carrier or a proton conductor and a catalyst and a voltage applying means, humidification or dehumidification is performed by removing excessive moisture in a hydrogen channel or a hydrogen chamber or by regulating the moisture. The hydrogen gas humidity controller and the fuel cell are constituted of a fuel side gas diffusion chamber being fed with hydrogen gas, a hydrogen gas chamber being fed with hydrogen gas, and the proton conductor for separating the fuel side gas diffusion chamber (72) from the hydrogen gas chamber (73) and passing moisture there through.

(57) 要約: 燃料ガスから余分な水分を除き、或いは水分を調整して加湿や除湿を行うことで、燃料電池の内部の湿 度を、常に一定の適正な状態に維持することができる水素ガス湿度制御装置と、その水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池および水素ガス湿度制御方法を提供することを目的とする。 水分搬送体又はプロトン伝導体と触媒と 電圧印加手段を用いて、水素流路又は水素室の余分な水分を除き、或いは水分を調整して加湿や除湿を行う。水素 ガスが供給される燃料側ガス拡散室と、水素ガスが供給される水素ガス室と、燃料側ガス拡散室72と水素ガス室 73とを分離すると共に水分を通すプロトン伝導体で水素ガス湿度制御装置および燃料電池



- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッ

パ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

水素ガス湿度制御装置、燃料電池、水素ガス湿度制御方法および燃料 電池の湿度制御方法

5

技術分野

本発明は、水素を含む燃料ガスを用いて連続して発電するようにした 燃料電池と、その燃料電池の制御、運転、維持管理等のために用いられ る燃料電池の湿度制御装置及び湿度制御方法に関するものである。

10

15

20

25

背景技術

従来の燃料電池としては、例えば、ノート型パソコン等のポータブル機器に搭載するための電源システムであって、燃料として水素を用い、空気を酸化剤とする小型の固体高分子型燃料電池を用いた機器搭載用燃料電池装置が知られている(特開平9-213359号公報(第3~4頁、図19))。

この特開平9-213359号公報に記載されている機器搭載用燃料電池装置は、水素と空気を用いて発電する燃料電池本体と、この燃料電池本体に供給する水素を貯蔵するための水素吸蔵ボンベと、この水素吸蔵ボンベを着脱可能な手段と、空気を供給するための手段と、発電により生成した水を回収する構成と、上記燃料電池本体に供給する水素を加湿する手段と、発電動作を制御する制御部と、これらを一体的に収納し、空気の吸排気口ならびに機器と電気的に結合する端子部を備えたケースとを有することを特徴としている。この燃料電池装置によれば、ポータブル機器に着脱自在に搭載することによって新しい電源システムを提供することができ、従来の電池にはない長時間の作動を可能とすると共に、

10

15

20

燃料の補給により繰り返し利用することができる。

また、従来の燃料電池としては、例えば、特開2002-10038 4号公報(第5~7頁、図1)に記載されているようなものがある。この特開2002-100384号公報には、燃料電池及びこれに好適に 用いられる水蒸気透過膜に関するものが記載されている。

この特開 2 0 0 2 - 1 0 0 3 8 4 号公報 2 に記載されている燃料電池は、電池反応を行う電池部と、電池部へ供給する原料気体を加湿する加湿部とを備え、前記電池部は、固体高分子電解質膜とその両側に配置された電極とからなる電池セルを有するものであり、前記加湿部は、原料気体が導入される原料気体用流路と、電池部からの排出気体が導入される排出気体用流路と、これらの流路を分離する水蒸気透過膜とで構成され、排出気体に含まれる水蒸気を、水蒸気透過膜を透過させて排出気体用流路から原料気体用流路内に入れ、この水蒸気と原料気体用流路内の原料ガスとを接触させることにより原料ガスを加湿するものである燃料電池において、前記水蒸気透過膜は、カルボキシル基の金属塩を官能基として有する繰り返し単位を70重量%以上有する水溶性高分子が、架橋剤で架橋されている物質からなる、ことを特徴としている。

更に、従来の燃料電池としては、特開2002-117878号公報 (第4~5頁、図1)に記載されているようなものもある。この特開2 002-117878号公報には、燃料電池及び燃料電池に供給する原 料ガスを加湿するのに好適に用いられる水蒸気透過膜に関するものが記載されている。

この特開2002-117878号公報に記載されている燃料電池は、電池反応を行う電池部と、電池部へ供給する原料気体を加湿する加湿部 25 とを備え、前記電池部は、固体高分子電解質膜とその両側に配置された 電極とからなる電池セルを有するものであり、前記加湿部は、原料気体

が導入される原料気体用流路と、電池部からの排出気体が導入される排出気体用流路と、これらの流路を分離する水蒸気透過膜とで構成され、排出気体に含まれる水蒸気を、水蒸気透過膜を透過させて排出気体用流路内の原料路から原料気体用流路内に入れ、この水蒸気と原料気体用流路内の原料ガスとを接触させることにより原料ガスを加湿するものである燃料電池において、前記水蒸気透過膜は、高分子樹脂多孔膜の表面に硬化したパーフルオロスルホン酸系イオン交換樹脂からなる透湿性樹脂層を設けた、ことを特徴としている。

また、本出願人は、例えば、図24に示すような構成の燃料電池を開発した。この図24に示す燃料電池は、発電部に燃料ガスを供給することによって電力を発生させる装置であり、4個の発電セル1、2、3及び4によって構成されている。4個の発電セル1~4は、燃料である水素の供給路に関して直列に接続されるように構成されている。4個の発電セル1~4は同一の構成を有しており、その構成を、第4の発電セル1~4は同一の構成を有しており、その構成を、第4の発電セル1を例にとって説明する。

発電セル4は、上下両面に触媒が担持されたプロトン伝導体膜電極接合体5と、このプロトン伝導体膜電極接合体5の一面側に配置された酸化剤電極側セパレータ6と、プロトン伝導体膜電極接合体5の他面側に配置された燃料電極側セパレータ7とを備えて構成されている。そして、プロトン伝導体膜電極接合体5と各セパレータ6,7との間には、それぞれ電極8,9が介在され、これらを締め付けて一体化させることによって発電セル4が構成されている。酸化剤電極側セパレータ6には、酸素、空気等の酸化剤を取り入れる酸化剤供給口6aが設けられている。また、燃料電極側セパレータ7には、燃料である水素が流通される複数の流路もしくは燃料室が形成されている。

このような構成を有する燃料電池によれば、例えば、次のようにして

10

15

20

25

発電が行われる。燃料の水素ガスが燃料電極側セパレータ7に供給され、酸化剤の空気が酸化剤電極側セパレータ6に供給される。燃料の水素ガス (H_2) が送られてくると、プロトン伝導体膜電極接合体5の触媒に水素 (H_2) が接触して電子 (e^-) が飛び出し、プロトン (H^+) が発生する $(H_2 \rightarrow 2\,H^+ + 2\,e^-)$ 。このプロトン (H^+) が高分子電解質膜の中を伝道して反対側に移動する。その反対側では、送られてきた空気中の酸素が触媒の力で、プロトン (H^+) 及び仕事を終えて戻ってきた電子 (e^-) と反応して水になる $(O_2 + 4\,H^+ + 4\,e^- \rightarrow 2\,H_2O)$ 。

この化学反応により、プロトン伝導体膜電極接合体 5 の酸化剤電極側 セパレータ 6 側には水が次々に生成される。この水がプロトン伝導体膜 電極接合体 5 の触媒やガス拡散層を覆うと、発電に十分な量の酸素が水 の被膜もしくは高い水蒸気分圧によって中に入り込むことができなくな る。これにより、水素と酸素を供給し続けることで継続される発電が行 われなくなるため、生成された前記水は外部に排水する必要がある。

一方、固体高分子型燃料電池(PEFC)では、プロトン伝導膜のプロトン伝導物質が水(以下「搬送水」という。)であるため、搬送水が無い乾燥した状態ではプロトンの移動は行われない。そのため、プロトン伝導膜では適切な水分管理が必要になる。更に、PEFCのプロトン伝導膜は、カソード側で生成された水分をアノード側へ逆拡散するようになっているが、条件によってはアノード側が水分過多の状態になるため、カソード側と同様に、アノード側の水分管理も重要になる。

なお、図24に示す符号10a,10b,10c,10d及び10e は、第一の発電セル1より供給されて第4の発電セル4から排出される 水素の流量を示している。符号10aは、供給される水素の流量が10 0%の状態にあることを示しており、符号10bは、第一の発電セル1 で消費された水素量を除いた水素流量を表している。更に、符合10c

10

15

20

は、第二の発電セル2で消費された水素量を除いた水素流量を表しており、符合10dは、同じく第3の発電セル3で消費された水素量を除いた水素流量を表している。そして、符号10eは、第4の発電セル4で消費された水素量を除いた水素流量を表しており、必要により残りの水素が第4の発電セル4から大気中に放出される。符号11は、第4の発電セル4に設けられた水素流路用のストップ弁である。

しかしながら、上述した特開平9-213359号公報には、燃料電池本体で生成された水を回収して保水する保水手段を備えることが記載されている。この保水手段は、電池装置ケースの底部に、燃料電池本体の水生成側に密接させてシート状に敷設されており、これが水素吸蔵ボンベの下面にも接するように延在されている。この保水手段の材料は、紙おむつや生理用品などの衛生用品、土壌保水材などの農業園芸用品等に使用される各種の高吸水性高分子が応用できる、としている。

そのため、保水手段の吸水性が極めて高いことから、保水手段自体の湿度が容易に100%近くまで増加してしまい、水分過剰な状態になり易いばかりでなく、水分の湿度調整を簡単に行うことができない、という課題があった。

また、図24に示した燃料電池では、常温近くでの運転条件下においては、燃料ガスに対する加湿が過剰になり、或いは水分の逆拡散によって湿度が高くなることが多い。そのため、4個の発電セル1~4に対して水素(燃料)をデッドエンドにて供給する場合を考えると、水素と水若しくは水蒸気の分圧特性は、図24において符号12で示すような傾向になる。

この水素と水等の分圧特性12は、4個の発電セル1~4の燃料ガス 25 の上流端における水素分圧を100%とすると共に、最下端における水 及び水蒸気分圧を100%として表したものである。即ち、第一の発電 セル1の燃料ガスの供給側(上流端)では水素の流量が100%であり、 その流れに伴い水素の割合が徐々に減少して、第4の発電セル4の排出 側(下流端)では水素の流量が0%(これと反対に、水若しくは水蒸気 の分圧が100%)となる。

5 その結果、燃料流路の下流側では、水等の分圧が上がって水素が欠乏した状態になる。そして、最終的に水素流量が 0 %となり、触媒やガス拡散層が水の結露により若しくは水蒸気の拡散が悪いために水素の供給が皆無になると、プロトンが酸素とまったく接触できなくなって発電が不能となる。一方、燃料流路の上流側では水若しくは水蒸気が皆無となることで、プロトンの伝導に必要な搬送水が不足することになり、そのため、発電が好ましい状態ではなくなる場合が生ずる。

本発明は、このような従来の課題に鑑みてなされたものであり、燃料ガスから余分な水分を除き、或いは水分を調整して加湿や除湿を行うことで、燃料電池の内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができる水素ガス湿度制御装置と、その水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池、水素ガス湿度制御方法および燃料電池の湿度制御方法を提供することを目的としている。

発明の開示

15

20 上述したような課題を解決し、上記目的を達成するために、本出願の 請求項1に記載の水素ガス湿度制御装置は、少なくとも水素ガスが供給 される第一の水素流路又は水素室と、少なくとも水素ガスが供給される 第二の水素流路又は水素室と、第一の水素流路又は水素室と第二の水素 流路又は水素室とを分離すると共に水及び/又は水蒸気を通す水分搬送 25 体と、からなることを特徴としている。

本出願の請求項2に記載の水素ガス湿度制御装置は、水素ガスが、燃

25

料改質により発生した水素ガスであることを特徴としている。

本出願の請求項3に記載の水素ガス湿度制御装置は、少なくとも水素ガスが供給される第一の水素流路又は水素室と、少なくとも水素ガスが供給される第二の水素流路又は水素室と、第一の水素流路又は水素室と第二の水素流路又は水素室とを分離するプロトン伝導体と、からなることを特徴としている。

本出願の請求項4に記載の水素ガス湿度制御装置は、プロトン伝導体は、第一の水素流路又は水素室に臨む面と第二の水素流路又は水素室に 臨む面の少なくとも一方に触媒が配置されていることを特徴としている。

10 本出願の請求項 5 に記載の水素ガス湿度制御装置は、第一の水素流路 又は水素室に第一の電圧印加用電極を設けると共に、第二の水素流路又 は水素室に第二の電圧印加用電極を設け、プロトン伝導体が第一の電圧 印加用電極と第二の電圧印加用電極との間に挟持されていることを特徴 としている。

15 本出願の請求項6に記載の水素ガス湿度制御装置は、第一の電圧印加 用電極と第二の電圧印加用電極との間に電圧を印加することを特徴とし ている。

本出願の請求項7に記載の水素ガス湿度制御装置は、触媒は白金を含んでいることを特徴としている。

20 本出願の請求項 8 に記載の水素ガス湿度制御装置は、水素ガスが、燃料改質により発生した水素ガスであることを特徴としている。

本出願の請求項9に記載の燃料電池は、燃料が供給される燃料電極側セパレータと、酸化剤が供給される酸化剤電極側セパレータと、燃料電極側セパレータと酸化剤電極側セパレータとの間に挟持されたプロトン伝導体膜電極接合体と、を有する1個又は2個以上の発電セルと、燃料が供給される水素流路及び/又は水素室に組み込まれた1個又は2個以

10

15

20

25

上の水素ガス湿度制御装置と、を備え、水素ガス湿度制御装置は、第一の支持板と、第二の支持板と、第一の支持板と第二の支持板との間に挟持された水分搬送体とからなり、第一の支持板に水素と水及び/又は水蒸気の混合気体が接しており、第二の支持板に少なくとも水素が接していることを特徴としている。

また、本出願の請求項10に記載の燃料電池は、燃料が供給される燃料電極側セパレータと、酸化剤が供給される酸化剤電極側セパレータと、燃料電極側セパレータと酸化剤電極側セパレータとの間に挟持されたプロトン伝導体膜電極接合体と、を有する1個又は2個以上の発電セルと、燃料が供給される水素流路及び/又は水素室に組み込まれた1個又は2個以上の水素ガス湿度制御装置と、を備え、水素ガス湿度制御装置は、第一の電極と、第二の電極と、第一の電極と第二の電極との間に挟持されたプロトン伝導体とからなり、第一の電極に水素と水及び/又は水蒸気の混合気体が接しており、第二の電極に少なくとも水素が接していることを特徴としている。

また、本出願の請求項11に記載の水素ガス湿度制御方法は、第一の電極と、第二の電極とでプロトン伝導体を挟持し、第一の電極と第二の電極との間に電圧を加えることにより、第一の電極に接触する水素と第二の電極接触する水素の間での水分の搬送を行うことを特徴としている。

上述のように構成したことにより、本出願の請求項1に記載の水素ガス湿度制御装置では、第一の水素流路又は水素室と第二の水素流路又は水素室を水分搬送体によって分離させているため、2つの水素流路又は水素室内の水及び/又は水蒸気の割合が異なる場合には、その割合が高い方から低い方に水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気が搬送される。これにより、2つの水素液路又は水素室間における水田など及びが表面により、2つの水素液路又は水素室間における水田など及び、

これにより、2つの水素流路又は水素室間における水及び/又は水蒸気の割合を同じくするように水素湿度を制御することができる。

本出願の請求項2に記載の水素ガス湿度制御装置では、水素ガスが、 燃料改質により発生した水素ガスであり、水蒸気改質等により発生する 水素は、水分を多く含むため、水分が不足する状況を回避し易いという 好ましい効果が得られる。

本出願の請求項3に記載の水素ガス湿度制御装置では、第一の水素流路又は水素室と第二の水素流路又は水素室をプロトン伝導体によって分離させているため、2つの水素流路又は水素室内の水及び/又は水蒸気の割合が異なる場合には、その割合が高い方から低い方に、或いは低い方から高い方にプロトン伝導体を介して水及び/又は水蒸気が搬送される。また、その割合が同じ場合であっても、一方から他方にプロトン伝導体を介して水及び/又は水蒸気が搬送される。これにより、2つの水素流路又は水素室間における水及び/又は水蒸気の割合を同じくしたり、任意の割合に設定するように水素湿度を制御することができる。

本出願の請求項4に記載の水素ガス湿度制御装置では、プロトン伝導体の第一の水素流路又は水素室に臨む面と第二の水素流路又は水素室に臨む面の少なくとも一方に触媒が配置されているため、その触媒によって水素をプロトンに分離させ、また、プロトンを水素に転換させることができる。

本出願の請求項 5 に記載の水素ガス湿度制御装置では、第一の水素流 82 路又は水素室には第一の電圧印加用電極が設けられ、第二の水素流路又は水素室には第二の電圧印加用電極が設けられ、これら電極間にプロトン伝導体が挟持されているため、これらでプロトンポンプを構成して水素ガスの湿度制御を行うことができる。従って、水素流路又は水素室内の水素湿度を最適な状態に保つための加湿・除湿装置、湿度センサ、減 25 圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、流量コントローラ等として用いることができる。

15

20

本出願の請求項6に記載の水素ガス湿度制御装置では、第一の電圧印加用電極と第二の電圧印加用電極の間に電圧を印加させることにより、 プロトン伝導体を介してプロトンを電圧の高い側から電圧の低い側に向けて移動させることができる。

5 本出願の請求項7に記載の水素ガス湿度制御装置では、触媒として白金を用いることにより、水素をプロトンに分離させ、或いは、プロトンを水素に転換させることを効率良く行うことができる。

本出願の請求項8に記載の水素ガス湿度制御装置では、水素ガスが、燃料改質により発生した水素ガスであり、水蒸気改質等により発生する水素は、水分を多く含むため、水分が不足する状況を回避し易いという好ましい効果が得られる。

本出願の請求項9に記載の燃料電池では、燃料電極側セパレータと酸化剤電極側セパレータとプロトン伝導体膜電極接合体とを有する1個又は2個以上の発電セルと、水素ガス湿度制御装置とを備えた燃料電池において、水素ガス湿度制御装置の第一の支持板と第二の支持板との間に水分搬送体が挟持され、第一の支持板に水素と水及び/又は水蒸気の混合気体が接触し、第二の支持板に少なくとも水素が接触しているため、燃料が供給される水素流路又は水素室内の水素湿度が高い場合には余分な水及び/又は水蒸気を水分搬送体で低い側に伝導させて除湿し、また、その水素流路又は水素室内の水素湿度が低い場合には水分搬送体で高い側から伝導させて加湿して、発電動作を効率良く継続させることができる。

また、本出願の請求項10に記載の燃料電池では、燃料電極側セパレータと酸化剤電極側セパレータとプロトン伝導体膜電極接合体とを有す 25 る1個又は2個以上の発電セルと、水素ガス湿度制御装置とを備えた燃料電池において、水素ガス湿度制御装置の第一の電極と第二の電極との

10

15

20

25

間にプロトン伝導体が挟持され、第一の電極に水素と水及び/又は水蒸気の混合気体が接触し、第二の電極に少なくとも水素が接触しているため、両電極間に電圧を印加することにより、電圧の高い側から低い側に向けて水及び/又は水蒸気を移動させることができ、その電圧の印加方向を制御することで2つの水素流路又は水素室の水素湿度を調整し、発電動作を効率良く継続させることができる。

また、本出願の請求項11に記載の水素ガス湿度制御方法によれば、第一の電極と、第二の電極とでプロトン伝導体を挟持し、第一の電極と第二の電極との間に電圧を加えることにより、燃料電池の燃料極に供給されて第一の電極に接触する水素と、第一の電極に接触する水素とは異なる湿度を有し第二の電極に接触する水素の間での水分の搬送を行うため、電圧の高い側から低い側に向けて水及び/又は水蒸気を移動させることができ、その電圧の印加方向を制御することで2つの水素流路又は水素室の水素湿度を調整し、燃料電池での発電動作を効率良く継続させることができる。

更に、上記課題を解決するために本出願の燃料電池は、燃料極と酸素極とで電解質を挟持した発電セルと、前記酸素極に酸素を供給するための酸素流路が形成された酸素極側セパレータと、前記燃料極に燃料ガスを供給するための燃料流路が形成された燃料極側セパレータと、前記燃料ガスに接触して配され、前記燃料ガスとは異なる湿度を有する排出気体に接触し、前記燃料ガスと前記排出気体との間での水分の搬送を行う水分搬送体と、を有することを特徴とする。

水分搬送体が燃料ガスと排出気体に接触し、燃料ガスと排出気体との間での水分搬送を行うことにより、燃料ガスが排出気体よりも高湿度な場合には燃料ガス側から排出気体側への水分の移動が行われ、燃料ガスが排出気体よりも低湿度な場合には排出気体側から燃料ガス側への水分

10

20

の移動が行われる。したがって、燃料電池での発電によって生成した水分によって、発電セルの発電に適さない湿度状態になったとしても、排出気体と燃料ガスとの間での水分搬送が繰り返されることによって、燃料電池の内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができる。

また、燃料電池は排出気体が流れる排出流路を有するとしてもよく、排出気体が酸素を含み燃料電池の酸素極側に供給されるとしてもよい。排出気体が流れる排出流路を燃料電池が有していることで、排出気体として燃料電池の外から空気を排出流路に送り込むことなどで、排出気体を効果的に水分搬送体に接触させることができ、燃料電池内部の湿度を適正な状態に維持することが容易となる。排出気体が酸素を含み、燃料電池の酸素極側に供給されることで、排出気体を用いて燃料電池が発電を行うことができるため、排出気体を有効に利用して発電を行うことが可能となる。

また、水分搬送体がパーフルオロスルホン酸系ポリマーを含むとする 15 ことで、水分を水分搬送体によって確実かつ容易に搬送することができ る。

また、上記課題を解決するために本出願の燃料ガス湿度制御方法は、燃料電池の燃料極側に供給される燃料ガスと接触するように水分搬送体を設け、前記燃料ガスとは異なる湿度を有する排出気体および前記燃料ガスを前記水分搬送体で隔て、前記水分搬送体を用いて前記燃料ガスと前記排出気体との間で水分の搬送を行うことを特徴とする。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第1の実 25 施例の概略構成を示す説明図である。

図2は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第1の実

施例に係る発電セルの組立状態の概略構成を示す説明図である。

図3は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第1の実施例に係る発電セルの配管構成の他の例を示す説明図である。

図4は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第2の実 5 施例の概略構成を示す説明図である。

図5は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第3の実施例の概略構成を示す説明図である。

図6は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第4の実施例の原理を説明するための説明図である。

10 図7は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の原理を説明するための説明図である。

図8は、図7に示す実施例の変形例の詳細な構成を示す説明図である。 図9は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第5の実 施例の原理を説明するための説明図である。

15 図10Aは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第1の実施例の概略構成を示す説明図であ る。

図10Bは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第2の実施例の概略構成を示す説明図である。

図11Aは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第3の実施例の概略構成を示す説明図であ る。

図11Bは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 25 発電セルを示す、発電セルの第4の実施例の概略構成を示す説明図であ る。

20

図12は、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る発電セルの第5の実施例の概略構成を示す説明図である。

図13Aは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第6の実施例の概略構成を示す説明図であ る。

図13Bは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第7の実施例の概略構成を示す説明図であ る。

図14Aは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 10 発電セルを示す、発電セルの第8の実施例の概略構成を示す説明図であ る。

図14Bは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第9の実施例の概略構成を示す説明図であ る。

15 図15Aは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第10の実施例の概略構成を示す説明図で ある。

図15Bは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第11の実施例の概略構成を示す説明図で ある。

図16Aは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 発電セルを示す、発電セルの第12の実施例の概略構成を示す説明図で ある。

図16Bは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る 25 発電セルを示す、発電セルの第13の実施例の概略構成を示す説明図で ある。

- 図17Aは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の水素 湿度と水素流路との関係を示すグラフである。
- 図17Bは、本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の水素湿度と水素流路との関係を示すグラフである。
- 5 図18は、本発明の湿度制御方法を用いた燃料電池の原理を説明する ための説明図である。
 - 図19は、本発明の湿度制御方法を用いた燃料電池の概略構成を示す 説明図である。
- 図20は、図19に示した本発明の湿度制御方法を用いた燃料電池の 10 変形例を示す説明図である。
 - 図21は、本発明の湿度制御方法を用いた燃料電池の電圧と時間との 関係の出力特性を示すグラフである。
 - 図22は、本発明の湿度制御方法を用いた燃料電池の電圧と内部抵抗との関係の出力特性を示すグラフである。
- 15 図23は、本発明の湿度制御方法を用いた燃料電池の電圧と電流との 関係の出力特性を示すグラフである。
 - 図24は、従来の燃料電池の概略構成を示す説明図である。

発明を実施するための最良の形態

20 以下、本発明の実施の形態を、添付図面を参照して説明する。図1乃至図23は、本発明の実施の例を示すものである。即ち、図1は本発明の燃料電池の第一の実施例の概略構成を示す説明図、図2は第一の実施例に係る発電セルの組立状態の概略構成を示す説明図、図3は第一の実施例に係る発電セルの配管構成の他の例を示す説明図、図4は本発明の鑑料電池の第二の実施例の概略構成を示す説明図、図5は本発明の燃料電池の第3の実施例の概略構成を示す説明図、図6は本発明の燃料電池

15

20

25

の原理説明図、図7は図6の詳細な構成の一例を示す説明図、図8は図7の詳細な構成の他の例を示す説明図、図10A, B、図11A, B、図12、図13A, B、図14A, B、図15A, B及び図16A, Bは発電セルとプロトンポンプの関係をそれぞれ説明する説明図、図17A, Bは水素湿度と水素流路との関係を説明するグラフである。

図18は本発明の湿度制御方法を用いた燃料電池の原理説明図、図1 9は本発明の湿度制御方法を用いた燃料電池の概略構成を示す説明図、 図20は図19の変形例を示す説明図である。

図 2 1 は本発明に係る燃料電池の出力特性を示すものでセル電圧

10 (V)と時間(sec)との関係を示すグラフ、図 2 2 は同じくセル電圧(V)と時間(sec)と抵抗(Ω)との関係を示すグラフ、図 2 3 は同じくセル電圧(V)と時間(sec)との関係を示すグラフである。

本発明の燃料電池は、アノード(陽極)で水素 (H_2) をプロトン $(2 H^+)$ と電子 $(2 e^-)$ に分解し、このときに生じる電子を電気として取り出すものである。この際、カソード (陰極)では、酸素 (O_2) と電解質膜を移動したプロトン及び外部回路を通ってきた電子とが結合し、水が副産物として生成される。

燃料電池に用いられるプロトン伝導体がプロトンを移動させるためには水が必要であるので、この生成水をプロトン伝導体内に拡散させ、プロトンの伝導率を高めるために積極的に活用されている。その一方、生成水がプロトン伝導体内で過剰になると、生成水が酸素の移動を妨げることになり、その結果、燃料電池の発電が阻害されることになる。また、プロトン伝導体を通じて水素(アノード)側に拡散した生成水が水素の移動を妨げる場合もある。そのため、燃料電池で安定な発電動作を連続させるためには、プロトン伝導体内の水分を常に一定範囲内に保つことが重要になる。

15

20

25

また、水素ガス湿度制御装置は、燃料電池に用いられる燃料ガス (特に水素) の湿度を制御するもので、水分を介在させてプロトンを移動させるプロトンポンプを用いる。プロトンポンプは、水素をプロトン経由にて移動すると共に、それに伴う水素又は水分の移動を目的とするもので、移動対象物は水素と水分である。このプロトンポンプを伝導する水素と水分の移動量は、例えば、プロトン伝導体膜電極接合体の両面に設けられた電極間に印加する電圧又は電流を大小変化させることによって調整することができる。

図1に示すように、本発明に係る水素ガス湿度制御装置の第1の実施 10 例として示すプロトンポンプは、水素流路が直列に接続された4個の発 電セル15,16,17及び18のうち、最も下流に位置する第四の発 電セル18に組み立てられて一体的に構成されている。

このうち、第一の発電セル15、第二の発電セル16及び第3の発電セル17の3個の発電セルは、従来例として示した図24の発電セル4と同様の構成を有している。即ち、第一~第三の発電セル15~17は、ともに上下両面に触媒が担持されたプロトン伝導体膜電極接合体5と、このプロトン伝導体膜電極接合体5の一面側に配置された酸化剤電極側セパレータ6と、プロトン伝導体膜電極接合体5の他面側に配置された燃料電極側セパレータ7と、プロトン伝導体膜電極接合体5と各セパレータ6、7との間にそれぞれ介在された電極8、9とを備えて構成されている。

一方、第四の発電セル18は、図24に示した発電セル4と同様の構成からなる発電部19を有しているが、その発電部19に加えて、水素ガス湿度制御装置であるプロトン伝導体20が燃料電極セパレータ24側に組み込まれている。発電部19とプロトン伝導体20の組み合わせが一体的に構成されることによって第四の発電セル18が構成されてい

10

25

る。この第四の発電セル18を含む4個の発電セル15~18を、水素が供給される水素流路を直列に接続して一体化させることにより、4個の発電セル15~18の組み合わせからなる燃料電池14が構成されている。

この燃料電池14の第四の発電セル18の発電部19と第一〜第三の 発電セル15~17とは、上述した発電セル1~4の構成と同一である ため、ここでは発電部19を代表させて、その構成および発電反応を簡 単に説明する。

発電セル15~18の発電部19は、中央に配置されたプロトン伝導体膜電極接合体22と、このプロトン伝導体膜電極接合体22の一面側に配置された酸化剤電極側セパレータ23と、プロトン伝導体膜電極接合体22の他面側に配置された燃料電極側セパレータ24と、2枚の集電板電極25,26を備えている。

プロトン伝導体膜電極接合体 2 2 は、中央に配置されたプロトン伝導体膜と、このプロトン伝導体膜の両面に設けられた第一及び第二の触媒との三層構造とされている。プロトン伝導体膜は、常温で高いプロトン(H+) 伝導性を示す高分子膜であり、例えば、パーフルオロスルホン酸膜、ナフィオン膜(フッ素樹脂系)等を用いることができる。また、第一及び第二の触媒としては、例えば、白金、白金・ルテニウム、或い20 はカーボン粉に白金等を担持させたもの、その他の触媒を用いることができる。

このプロトン伝導体膜電極接合体22の第一の触媒側に燃料側の集電板電極25が配置され、プロトン伝導体膜電極接合体22の第二の触媒側に酸化剤側の集電板電極26が配置されている。このように三層構造とされた集電板電極25、プロトン伝導体膜電極接合体22及び集電板電極26を、その両面から酸化剤電極側セパレータ23と燃料電極側セ

パレータ24とで挟持することにより発電部19が構成されている。

酸化剤電極側セパレータ23は、例えば、薄い平板状の部材からなり、 その中央部には、一方の面から他方の面まで貫通する酸素、空気等の酸 化剤を取り入れるための酸素取入口27が設けられている。また、この 酸化剤電極側セパレータ23とプロトン伝導体膜電極接合体22との間 に、同じく酸素取入口を有する酸化剤側の集電板電極26が配置されて いる。酸素取入口27から大気中の酸素が取り入れられ、その酸素が集 電板電極26を介してプロトン伝導体膜電極接合体22の第二の触媒に 供給される。

10 また、燃料電極側セパレータ24も同様に、例えば、薄い板状の部材からなり、その側面には、燃料の一具体例である水素が供給される燃料供給口が設けられている。この燃料電極側セパレータ24の両面には、水素を電極と接触させるための水素接触部が設けられている。この水素接触部が燃料供給口と連通されていて、燃料供給口から供給された水素が、内部通路を通って燃料電極側セパレータ24の両面に設けられた水素接触部に放出される。したがって、燃料電極側セパレータ24とプロトン伝導体膜電極接合体22との間に配置されている燃料側の集電板電極25側には水素接触部から水素が供給される。

20 燃料電極側セパレータ24は、プロトン伝導体20の一方のセパレータである第一のセパレータを兼ねている。尚、第一の発電セル15から第三の発電セル17においては発電部のみで構成されていて、プロトンポンプ部がないため、それらの燃料電極側セパレータ7には、その一面のみに水素接触部が設けられ、他面には燃料ガスが漏れない構造とされ25 ている。

このような構成を有する燃料電池によれば、例えば、次のようにして

発電が行われる。燃料の水素ガスが燃料電極側セパレータ 24 に供給され、酸化剤の空気が酸化剤電極側セパレータ 23 に供給される。燃料の水素ガス(H_2)が送られてくると、プロトン伝導体膜電極接合体 22 の触媒に水素(H_2)が接触して電子(e^-)が飛び出し、プロトン(H^+)が発生する($H_2 \rightarrow 2 H^+ + 2 e^-$)。このプロトン(H^+)がプロトン伝導体膜中を伝道して反対側に移動する。その反対側では、送られてきた空気中の酸素が触媒の力で、プロトン(H^+)及び仕事を終えて戻ってきた電子(e^-)と反応して水になる($O_2 + 4 H^+ + 4 e^- \rightarrow 2 H_2$ O)。

次にプロトン伝導体20の構成と動作について説明する。プロトン伝導体膜の特性は、プロトンのみを移動することであるが、プロトンの移動のために水(H₂O)をOH-Hの形で保有し、その-Hを足場として、プロトン(H⁺)を移動するのが基本である。そのため、プロトン伝導体膜は、実際には、プロトンのみを伝導するのではなく、同時に水も透過させることができる。このプロトン伝導体膜の水の透過性を利用することにより、ポンプ装置等の外部装置を用いることなく、燃料電池内部の過剰な水分を外部に排出したり、水分の流れる方向、水分の流量その他の水分の制御が可能となる。

第一のセパレータ24を用いて構成されるプロトン伝導体20は、第20 一のセパレータ24の他に、第二のセパレータ28と、両セパレータ24,28間に挟持されたプロトン伝導体膜電極接合体29と、2枚の印加電極30,31を備えて構成されている。第二のセパレータ28は、第一のセパレータ24と同様に水素ガスが流通されるもので、戻り配管33の一端が接続されている。この第二のセパレータ28に到達した水25素ガス(H₂)が、戻り配管33を介して上流側の発電セル(この実施例では第一の発電セル15)に戻される構成となっている。

10

15

20

25

プロトン伝導体膜電極接合体29は、発電部19のプロトン伝導体膜電極接合体22と同様の構成とすることができる。この実施例ではプロトン伝導体膜電極接合体29は、プロトン伝導体膜電極接合体22と同様の構成とされており、中央に配置されたプロトン伝導体膜と、このプロトン伝導体膜の両面に設けられた第一の触媒及び第二の触媒の三層構造とされている。そして、第一の触媒側に第一の印加電極30が配置され、第二の触媒側に第二の印加電極31が配置されている。

このように三層構造とされた第一の印加電極30、プロトン伝導体膜電極接合体29及び第二の印加電極31を、その両面から第一のセパレータ24と第二のセパレータ28とで挟持することによりプロトン伝導体20が構成されている。第一の印加電極30と第二の印加電極31にはポンプ側電気回路48が接続され、第一の印加電極30と第二の印加電極31との間の電位差を変更可能となっている。後述するようにプロトン伝導体20は、ポンプ側電気回路48が第一の印加電極30と第二の印加電極31との間に生じさせる電位差によって、第一のセパレータ24からプロトン伝導体20、第一の印加電極30、プロトン伝導体膜電極接合体29及び第二の印加電極31を経て第二のセパレータ28に向けて水素および水分を搬送することができる。また、第二のセパレータ28側から第一のセパレータ24側に水素および水分を搬送することもできる。

第一の印加電極 3 0 と第二の印加電極 3 1 は、ポンプ側電気回路 4 8 によってその正極(+極)及び負極(一極)を変更可能な状態(電圧の印加方向が可変)で互いに電気的に接続されている。この場合、例えば、第一の印加電極 3 0 の電圧が第二の印加電極 3 1 の電圧よりも高くなるように電圧を印加すると、水素(H_2)が第一のガス拡散層の触媒と接触して電子(2 e $^-$)が飛び出す。これと共に、プロトン(2 H $^+$)がプ

ラスイオンであるためマイナス側に引っ張られ、プロトン伝導体膜電極接合体 2 9 を透過するように移動する。

このとき、第一のセパレータ24から供給される水素(H_2)は、3個の発電セル15~17を通過してきた後の逆拡散水による水分を十分に含んだウエット水素であり、それ自体が含有する水分によってプロトン伝導体膜電極接合体29を伝導する際の搬送水の機能が確保されている。そのため、第一の印加電極30側にあるプロトン(H^+)は、搬送水(H_2 O)により搬送されてプロトン伝導体膜電極接合体29を透過し、第二の印加電極31側に容易に移動することができる。そして、第10 二の印加電極31側に移動したプロトン(H^+)は、電子(e^-)と反応して水素(H_2)となる($2H^++2e^-\rightarrow H_2$)。その後、水分を多量に含んだウエット水素(H_2)は、第二のセパレータ28から戻り配管33に流される。その結果、発電部19に供給される水素の水分を低くすることができ、これにより、ウェット状態で発電部19に供給される水素を発電に適する湿度にすることができる。

これとは逆に、第二の印加電極 3 1 の電圧が第一の印加電極 3 0 の電圧よりも高くなるように電圧を印加すると、第二の印加電極 3 1 側にあるプロトン(H^+)は、搬送水(H_2 O)により搬送されてプロトン伝導体膜電極接合体 2 9 を透過し、第一の印加電極 3 0 側に容易に移動することができる。そして、第一の印加電極 3 0 側に移動したプロトン(H^+)は、電子(e^-)と反応して水素(H_2)となる($2H^++2e^-\rightarrow H_2$)。この水素が第一のセパレータ 2 4 を介して発電部 1 9 に供給されると、燃料の水素として発電に使用される。

このように、第二のセパレータ28側に多くの水分があり、発電部1 25 9に連通された第一のセパレータ24側にある水素が乾いている場合に は、水分を多く含んだ水素(H₂)を、プロトン伝導体膜電極接合体2

10

15

20

25

9を介して第一のセパレータ24側に戻すことができる。その結果、発電部19に供給される水素の水分を高くすることができ、これにより、ドライ状態で発電部19に供給される水素を発電に適する湿度にすることができる。

このように、ポンプ側電気回路48でプロトン伝導体20の第一の印加電極30及び第二の印加電極31間における電圧の印可方向を変えることにより、プロトン伝導体20を正方向と逆方向に移動する割合を調整して、混合後の水素の湿度を決定することができる。即ち、プロトン伝導体20を透過して第一の印加電極30から第二の印加電極31に移動する水素の水分量を高くしたり、これとは逆に、第二の印加電極31から第一の印加電極30に移動する水素の水分量を高くしたりして、その水分量を自在に調整することが可能となる。

この場合、プロトン伝導体20が第四の発電セル18のみに設けられているため、第四の発電セル18の発電部19のみが集中して加湿若しくは除湿されることになる。更に、そのプロトン伝導体20に連通された第二のセパレータ28には戻り配管33が接続されているため、その戻り配管33からの水素及び水分の逆流によってもプロトン伝導体20の水素湿度が影響を受けることになる。

第二のセパレータ28の燃料排出口に一端が接続された戻り配管33 内には、プロトン伝導体20の第二のセパレータ28から排出されたウエット水素若しくは水分を貯蔵しておくことができる水分貯蔵器(リザーバー)34が設けられている。この水分貯蔵器34は、第二のセパレータ28内又はその近傍に設けるようにしてもよい。水分貯蔵器34にはドレン配管35が設けられていて、ドレン配管35の開口側には開閉弁36が取り付けられている。この水分貯蔵器34には、内部に発生した結露を水素と分離させる機能が備えられており、その結露が集まって

10

できた水が開閉弁36を開放することによって大気中に排出される。この水分貯蔵器34で水分が適当に取り除かれた水素が、第一の発電セル15の燃料供給口のある燃料電極側セパレータ7に還流される。

上述したプロトン伝導体 20 によれば、水素も水も共にポンプすることができるが、その場合に必要とされるエネルギーについて説明する。水素の1 原子 $(1/2 \cdot H_2)$ に対してプロトン (H^+) は 1 個であり、このときの電子 (e^-) は 1×1 . 6×10^{-19} [C] であって、この水素のための搬送水 (同伴水) は、一般的に $1 \sim 2$. 5 個といわれており、ここではそのように仮定する。すると、水素 1 分子 (H_2) の場合は、1 原子のときの 2 倍であるため、プロトン (H^+) は 2 個となり、電子 (e^-) は 2×1 . 6×10^{-19} [C] であって、搬送水は $2 \sim 5$ 個である。

これを水素 1 [mo1] に換算すると、プロトン(H^+)は 2×6 . 0 2×1 0 23 個となり、電子(e^-)は 2×1 . 6×1 0 $^{-19} \times 6$. 0 2×1 1 0 23 [C] であって、搬送水は $2 \sim 5$ [mo1] である。これを、搬送水の 1 [mo1] に換算すると、電子(e^-)は 2×1 . 6×1 0 $^{-19}$ $\times 6$. 0 2×1 0 $^{23} \times 1$ / $2 \sim 1$ / 5 [C]、プロトン(H^+)は 2×6 . 0 2×1 0 $^{23} \times 1$ / $2 \sim 1$ / 5 [C]、水素は 1×1 / $2 \sim 1$ / 5 [mo1] である。

20 ここで、1秒当りの水素量を10⁻⁶[mol/s](=1.34cc/s)とすると、得られる電子量は0.193[A]であり、このときの搬送水は5×10⁻⁶[mol/s]である。発電セル18においては、1[A]の電流を得るために必要な水素量は7[cc/min]となり、このとき生成水は5.19×10⁻⁶[mol/s]が発生する。従って、25 例えば、全生成水が逆拡散した最悪の状態を仮定した場合でも、プロトン伝導体20は、極めて低い電圧を用いて、発電電流の1/2~1/5

の電流で全生成水をプロトンの搬送水として循環させて、湿度の持ち出 しを行うことができる。

一般に、1個の発電セルの発電量 [W] は、電流を5 [A] としたとき、電圧が0.6~0.7 [V] であれば、3.0~3.5 Wとなる(例えば、0.6 [V] ×5 [A] = 3 [W])。

これに対して、プロトン伝導体 2 0 の動作に必要な電力量 (消費電力) は、電流を 5 [A]として、電圧を 5 0 [m V]とすると、0.25 [W] となる (5 0 [m V] × 5 [A] = 0.25 [W])。従って、発電セルで 3 5 [cc/min]の水素消費があり、プロトン伝導体 2 0 で 3 5 [cc/min]の水素循環がなされた状態で運転されるものとすると、発電セルに対するプロトンポンプの効率は、効率 = 3 [W]÷0.25 [W] ≒ 1 2 倍となる。

また、発電セルを35 [cc/min]で運転し、そのうち14 [cc/min]を戻り配管33から戻すものとして、プロトン伝導体20 の駆動電流が2 [A]であって、電圧が20 [mV]であるとすると、このときの消費電力は0.04 [W]となる(0.02 [V]×2 [A]=0.04 [W])。従って、この場合における、発電セルに対するプロトンポンプの効率は、効率=3 [W]÷0.04 [W]≒80倍となる。

- 20 このように、本実施例の発電セル18及び燃料電池14によれば、発電部19で発電された電力の一部をプロトン伝導体20で消費するが、その消費量は発電量に比べて極めて少ないため(発電電圧0.6又は0.6~0.7 Vに対して、消費電圧0.05 V位)、発電効率の低下を最小限に抑えつつ、発電動作を効率良く継続させることができる。
- 25 図1に示した構成を有する燃料電池14の作用は、例えば、次のようなものである。4個の発電セル15~18を、これらに供給される水素

10

の流路を直列に接続する。そして、第一の発電セル15から第二の発電セル16及び第三の発電セル17を介して第四の発電セル18に向けて、燃料としての水素を供給する。なお、燃料は水素を直接供給してもよいし、燃料改質等により発生する水素を使用してもよい。特に水蒸気改質等により発生する水素は、水分を多く含むため、水分が不足する状況を回避し易く、本発明により好ましい効果が得られる。

このように接続された4個の発電セル15~18に対して燃料としての水素をデッドエンドにて供給した場合、3個の発電セル15~17及び発電セル18の発電部19で逆拡散水が顕著に発生し、これらの水が水素の流れに応じて下流側に押し流されることで水素と水若しくは水蒸気の分圧特性が徐々に変化する。この分圧特性の変化は、水分が水の場合と水蒸気の場合とでは異なるが、水として結露すると、その水分は水素ガスの流れに乗りにくいものとなる。

いま、4個の発電セル15~18において発電電流が等しいものと仮定する。この状態で、水等の分圧特性を水素の流量で考えると、デッドエンドの場合、下流端の水素流量56が0cc/minであるため、上流端である第一の発電セル15の水素流量52を100cc/minとすると、第二の発電セル16の供給側では水素流量53は75cc/min、第三の発電セル17の供給側では水素流量54は50cc/minな第二の発電セル18の供給側では水素流量55は25cc/minとなり、これらの値が妥当な理想値と考えられる。

このような環境状態において、第一~第三の発電セル15~17及び 第四の発電セル18の発電部19では、例えば、次のようにして発電が 行われる。即ち、燃料の水素ガスが燃料電極側セパレータ7若しくは2 4に供給されると共に、酸化剤の空気が大気中から酸化剤電極側セパレ ータ6若しくは23に供給される。その結果、燃料の水素ガス(H₂)

がプロトン伝導体膜電極接合体 5 若しくは 2 2 の第一の触媒と接触して電子 (e^-) が飛び出し、プロトン (H^+) が発生する ($H_2 \rightarrow 2 H^+ + 2 e^-$)。

このプロトン(H^+)がプロトン伝導体膜電極接合体 5 若しくは 2 2 のプロトン伝導体膜を通り抜けて反対側の第二の触媒に向かう。この第二の触媒では、送られてきた空気中の酸素が触媒の力でプロトン(H^+)及び仕事を終えて戻ってきた電子(e^-)と反応し、これにより水が生成される($O_2+4H^++4e^-\rightarrow 2H_2O$)。

この化学反応により、プロトン伝導体膜電極接合体 5 若しくは2 2 の 酸化剤電極側セパレータ 6 若しくは2 3 側には水がどんどん生成される。 このような水及び逆拡散水の拡散過程は、4 個の発電セル1 5 ~ 1 8 に おいて同様に行われるが、上流側の発電セルに供給される水素に逆拡散 した水分量よりも下流側の発電セルに供給される水素の水分量が大とな る。これは、水素が下流に移動するに伴って逆拡散水も押し流され、第 四の発電セル1 8 において吹き溜まりとなって次から次へと蓄積される。 そこで、第四の発電セル1 8 の発電部 1 9 で生成され且つ水分を多く含 んだ水素を、プロトン伝導体 2 0 から排出し、戻り配管 3 3 に戻すよう にする。

この場合、プロトン伝導体20のポンプ側電気回路48では、第一の20 印加電極30の電位が第二の印加電極31の電位以上になるように電圧を印加させる。その結果、第一のセパレータ24から供給される水素(H2)が第一の触媒と接触して電子(e⁻)が飛び出すと共に、プロトン(H⁺)が第一の触媒からプロトン伝導膜を伝導して第二の触媒に向かって移動する。

25 このとき、第一のセパレータ 2 4 から供給される水素 (H_2) は、上流の 3 個の発電セル 1 5 \sim 1 7 を通過する際に水分を吸収して湿度が高

15

められた後のウエット水素であり、その水素自体が十分な水分を含有している。そのため、この水素(H_2)には、それ自体を移動させるに必要な搬送水の機能が確保されている。従って、第一の触媒で発生したプロトン(H^+)は、プロトン伝導膜を伝導して第二の触媒に向かって容易に移動することができる。

更に、第二の触媒側に移動したプロトン(H^+)は、電子(e^-)と反応して水素(H_2)となる($2H^++2e^-\rightarrow H_2$)。これにより、水分を多量に含んだ水素(H_2)が生成される。その後、水分を多量に含んだウエット水素は、第二のセパレータ 2 8 から戻り配管 3 3 に送られる。

10 戻り配管33に送られたウエット水素は、水分貯蔵器34に一時的に蓄 えられ、一部は水分が十分に高められて結露となり、残部は水分が取り 除かれて適度な湿気を有する水素に変換される。

この適度な湿度を有する水素が第一の発電セル15に戻され、新規なドライ水素と混合されて、再び発電に供される。このようなサイクルが連続されることにより、燃料電池14によって連続した発電動作が行われると共に、下流側の発電セル18から十分に水分が含まれた水素を排出させて、発電動作の実行を確保することができる。

ここに述べた燃料電池の作用は、多数の発電セルを直列に接続した場合のものであるが、これは単一の発電セルにおいても同様である。即ち、

20 1個の発電セルにおいても、水素ガスの上流部と下流部とで同様に当てはまることである。

図2は、図1に示した第四の発電セル18の原理確認用の装置を表したものであり、その発電セルの組立状態及びその配管構造等の概略構成を示している。燃料電極側セパレータ(第一のセパレータ)24には水25 素流路40が接続されていて、その水素流路40には、供給される水素の圧力を検出する圧力計41が設けられている。この水素流路40に供

10

15

20

給される水素は、水分を含まないか又は含む水分の少ない、いわゆるドライ水素と呼ばれるものである。また、酸化剤電極側セパレータ23には、大気中の空気が酸素取入口27から供給される。

更に、第二のセパレータ28に一端が接続された戻り配管33の他端が、水素流路40の圧力計41の下流側に接続されている。この戻り配管33には、第二のセパレータ28から近い順に湿度計43と圧力計44と流量計45と逆止弁46が配設されている。湿度計43は、第二のセパレータ28から水素流路40に戻される水素の湿度を測定するものである。また、圧力計44は、戻り配管33内の圧力、即ち、第二のセパレータ28から水素流路40に戻される水素の圧力を測定するものである。

また、流量計45は、戻り配管33内を流れる水素の流量を測定する ものである。そして、逆止弁46は、水素流路40から戻り配管33に 向かって水素が流れ込むのを防止するものである。通常、戻り配管33 内の水素の圧力は、水素流路40内の水素の圧力と同等か若しくは高い ため、水素流路40内のドライ水素に混ぜて再循環させるように構成さ れている。

尚、圧力計41、湿度計43、圧力計44、流量計45及び逆止弁4 6は、あくまでもプロトンポンプの原理を確認するために必要とされる ものである。そして、これら圧力計41等の配置、配列は、この実施例 のものに限定されるものではない。更に、デバイス装置としての実用に 際しては、圧力計41等は必要に応じて用いられるものであって、不要 時にはそれぞれ省略することが可能なものである。

この発電セル18の発電部19には発電側電気回路47が形成されて 25 いる。この発電側電気回路47には、燃料電極側セパレータ24からプロトン伝導体膜電極接合体22を経て酸化剤電極側セパレータ23に向

10

かう方向に流れる図2において時計方向の電流が発生される。また、発電セル18のプロトン伝導体20にはポンプ側電気回路48が形成される。このポンプ側電気回路48には、第二のセパレータ24からプロトン伝導体膜電極接合体29を経て第二のセパレータ28に向かう方向に流れる図2において反時計方向の電流が印加される。

このポンプ側電気回路48は、プロトン伝導体20の第一の印加電極30と第二の印加電極31との間に適当な大きさの電圧を印加できるように構成したことによるものである。更に、ポンプ側電気回路48には、印加される電圧の大きさ及びその電圧の印加方向を変更可能な可変電源49が設けられている。このポンプ側電気回路48では、通常、第一の印加電極30の電位が第二の印加電極31の電位以上に高くなるように電圧を印加させるようにする。これにより、プロトン伝導体20にポンプ作用が生じ、水分を多く含んだウエット水素を戻り配管33に流すことができる。

15 これとは反対に、第一の印加電極30の電位が第二の印加電極31の電位よりも低くなるように電圧を印加させると、水分を多く含んだウエット水素が第二のセパレータ28側から第一のセパレータ24側に向かって移動する。これにより、水分を多く含んだウエット水素が、第一のセパレータ24から発電部19に供給され、その水分が発電部19において発電等に利用されて、有効な発電その他の働き(搬送水の役割等)に利用される。

図3は、図2の回路構成を変形した実施例を示すものであり、図2と同一部分には同一の符号を付している。この実施例では、戻り配管33に変えて迂回配管50を設け、迂回配管50の一端を第二のセパレータ2528に接続し、その他端を第一のセパレータ24に接続するように構成されている。迂回配管50には、第二のセパレータ28に近い側から順

10

15

に圧力計44、湿度計43及び流量計45が配設されているが、逆止弁 は省略されている。この圧力計44等の配置、配列については、これに 限定されるものではなく、また、逆止弁を設ける構成としてもよい。こ のような接続構成とすることによっても、図2の実施例と同様の効果を 得ることができる。

図17A, Bは、水素湿度と水素流路との関係を説明するグラフである。図17Aにおいて、符号57は、従来の湿度分布を示すものであり、水素流路の上流部では水素密度が高くなっていて、下流部に移動するに従って比例的に水素密度が低くなっている。符号58は、従来の水素の湿度分布に対して、湿度制御による加湿、除湿制御を行った範囲を示すものである。この場合、水素流路の上流部と下流部では水素湿度に相対差があるため、これだけでは好ましいものではないので、符号59に示すように、湿度循環による湿度勾配を平均化するようにする。

図17Bは、本実施例のように水素湿度を制御し、湿度循環による湿度勾配を平均化すると共に、平均化された水素湿度(符号59)の湿度分布範囲(符号60)を示すものである。このように水素湿度の平均化を図ることにより、発電効率の低下を最小限に抑えつつ、発電動作を効率良く継続させることができる。

しかも、本発明によれば、プロトン伝導体20は、プロトン伝導体膜 20 のドライアップ時(水分が不足した乾燥時)には、一般的に作動しにく いが、水素循環が必要となるのは水素流路が水によって閉塞されたとき であるため、その水によってプロトンポンプを動作させるための湿度を 十分に確保することができる。更に、本実施例のように、発電部19と プロトン伝導体20を互いに近接させて設けることにより、発電部19 に向かう水素の湿度とプロトン伝導体20に向かう水素の湿度を同等レベルに保持することができる。

10

15

その結果、プロトン伝導体20の内部抵抗(=印加電圧/電流)を観測することで水素極(燃料極)全体の湿度を同時にセンシングすることができ、これによって湿度センサの役割を果たすことができる。また、上述したように、一対のガス拡散層間における電圧の印加方向を反転させることにより、ポンプ方向を反転させて湿度の高い水素を逆方向に移動させることができる。しかも、ポンプ量(ポンプスピード)は、水素流量を調整することによって自由に設定することができ、プロトンポンプの面積、印加電圧、電流、プロトン伝導体膜の材料等とのマッチングを図ることにより、ポンプ効率を高めて最適化を図ることができる。

また、プロトンポンプによれば、プロトン伝導体膜を通じて行われるプロトンの伝導に加えて、搬送水の移動を促進させることができる(水素と水分の移動)。これにより、燃料である水素の湿度を発電に適したものに調整することが出来るため、発電部のプロトン伝導体の過乾燥や水没による発電反応の低下を防止することが可能となる。更に、水分の移動に関しては、使用箇所によって除湿若しくは加湿の効果を発揮させることができる。更に又、水素の移動には、その圧力や流量の調整を図ることができる。更に又、水素の移動には、その圧力や流量の調整を図ることができる。減圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、或いは流量コントローラとして機能させることもできる。そして、この際の圧力勾配により、循環流の一方化を図り、水素の逆流防止を行うことができる。

20 尚、燃料ガスとしては、純粋の水素のみからなる水素ガスばかりでなく、成分の一部に水素を含む水素混合ガス(例えば、メタン、メタノール、プロパン、ブタン、ガソリン等)を用いることができる。即ち、高圧ボンベや液体水素タンク、水素吸蔵合金等を用いて水素そのものを供給する方法の他、天然ガス(メタン)、メタノール等の既存の炭化水素
 25 系燃料を改質して水素リッチな改質ガスを供給する方法等が用いられる。また、酸素の供給も同様であり、空気を供給する方法の他、酸素そのも

. 5

10

15

20

のを供給する方法を用いることもできる。

図4は、本発明の燃料電池の第2の実施例を示すものであり、この実施例に示す燃料電池62は、上述した第一の実施例の水分貯蔵器34に、新たなドライ水素63を供給し、戻り配管33内の水素の状態を調整するように構成したものである。他の構成は、上述した図1の場合と同様であるため、同一部分には同一の符号を付して、それらの説明を省略する。尚、戻り配管33は、この実施例においても前記実施例と同様に、管状の部材を用いて配管として接続する構成として図示したが、配管による接続に限られるものではなく、例えば、セパレータ同士を接合させて戻り管路を形成する等の他の接続構成を含むことは勿論である。

この第2の実施例によれば、予めウエット水素によって適度な湿度が与えられたドライ水素が、4個の発電セル15~18のうち第一の発電セル15の燃料供給口に供給される。そのため、4個の発電セル15~18の直列とされた水素流路を通して、略平均化された湿度を有する水素を流通させることができる。

図5は、本発明の燃料電池の第3の実施例を示すものであり、この実施例に示す燃料電池64は、上述した第2の実施例の第一の発電セル15を第四の発電セル18と同一の構成として第一の発電セル15Aを設け、最上流に位置する発電セルにもプロトン伝導体20を設けたものである。第一の発電セル15Aは第四の発電セル18と同様の構成を有しており、戻り配管33の先端が第一の発電セル15Aに接続されている。燃料電池64の他の構成は、図4に示した第2の実施例と同様であるため、同一部分には同一の符号を付して、それらの説明を省略する。

この第3の実施例では、第四の発電セル18のプロトン伝導体20か 25 ら排出されたウエット水素が水分貯蔵器34に供給され、その水素は水 分貯蔵器34に供給される新たなドライ水素63と混合される。その混

10

合後の適度に湿度が調整された水素が、第一の発電セル15Aのプロトン伝導体20の第二のセパレータ28に供給される。この第二のセパレータ28から供給された水素は、プロトン伝導体20を通過する際に上述したポンプ作用に供される。その後、プロトン伝導体20を通過した水素の一部が発電部19に移動して上述した発電作用に供される。

一方、プロトン伝導体20を通過した水素のうち発電部19で消費された分を除く残部は、第一のセパレータ24から第二の発電セル16側に移動する。この水素の一部は第二の発電セル16において発電に供され、その残部が第三の発電セル17に供給される。更に、第三の発電セル17に移動した水素は、その一部が発電に供され、残部が第四の発電セル18に供給される。そして、第四の発電セル18において、上述したように、発電部19による発電作用とプロトン伝導体20によるポンプ作用とが行われる。

尚、図5における水分貯蔵器(リザーバー)34は、第一の発電セル15 15A或いは第四の発電セル18の内部に設ける構成としてもよい。また、4個の発電セル15A,16~18のすべてを一体に構成し、その内部に水分貯蔵器34を内蔵する構成とすることもできる。

図6は、本発明の燃料電池の実施例の原理を説明する図である。この 燃料電池65は、互いに重ね合わされる酸化剤電極側セパレータ66、 20 燃料電極側セパレータ67及び第三のセパレータ68と、発電部69と、 水素ガス湿度制御装置の一具体例を示すプロトン伝導体70を備えて構成されている。酸化剤電極側セパレータ66と燃料電極側セパレータ67は発電部69を介して重ね合わされており、両セパレータ66,67の内部に形成された空間部が発電部69によって酸化剤側ガス拡散室72とに仕切られている。第三のセパレータ68は燃料電極側セパレータ67の外側に重ね合わされており、これにより

15

20

両セパレータ67,68の内部に、水素ガスが供給される第二の水素流 路又は水素室の一具体例を示す水素ガス室73が形成されている。

更に、酸化剤電極側セパレータ66には酸素供給ロ74が設けられて おり、この酸素供給口74が酸化剤側ガス拡散室71に連通されている。 この酸素供給口74には、大気中の空気(特に酸素)或いは酸素貯蔵器 から酸素が供給される。また、燃料電極側セパレータ69には燃料供給 口75が設けられており、この燃料供給口75が燃料側ガス拡散室72 に連通されている。この燃料供給口75には、水素貯蔵器等の燃料供給 源が接続され、その燃料供給源から燃料(特に水素)が供給される。第 10 三のセパレータ68には水素供給口76が設けられており、この水素供 給口76が水素ガス室73に連通されている。この水素供給口76には、 前記水素貯蔵器等の燃料供給源又は別個に設けた水素供給源が接続され、 その水素供給源から水素が供給される。

これら酸化剤電極側セパレータ66、燃料電極側セパレータ67及び 第三のセパレータ68の材質としては、例えば、非伝導性のセラミック スやプラスチック等を適用できることは勿論のこと、伝導性を有するア ルミニウム合金、ステンレス合金、或いはカーボン材等を適用すること もできる。図6に示す実施例は、3つのセパレータを伝導性の材料で形 成したものであり、この場合、酸化剤電極側セパレータ66と燃料電極 側セパレータ67との間、及び燃料電極側セパレータ67と第三のセパ レータ68の間には、それぞれ絶縁性のシール部材77を介在させるよ うにするとよい。

燃料電池65の発電部69は、酸化剤電極側セパレータ66と燃料電 極側セパレータ67との間に保持された発電用のプロトン伝導体膜78 と、このプロトン伝導体膜78の両面に設けられた一対の触媒層79, 25 80を備えている。これら触媒層79,80の材質としては、例えば、

10

白金や白金・ルテニウム等の触媒を用いることができる。一方の触媒層 79の周囲を囲う酸化剤側ガス拡散室 71 が酸化剤側のガス拡散層とされていて、他方の触媒層 80の周囲を囲う燃料側ガス拡散室 72 が燃料電極側のガス拡散層とされている。これらガス拡散層の材質としては、例えば、カーボンクロス、カーボンペーパー等を用いることができる。

また、燃料電極側セパレータ67には、燃料側ガス拡散室72と水素ガス室73を連通する開口部83が設けられている。この開口部83にはプロトン伝導体70が取り付けられており、これらの水分搬送体若しくはプロトン伝導体によって開口部83が仕切られて、第一の水素流路又は水素室である燃料側ガス拡散室72と第二の水素流路又は水素室である水素ガス室73とが分離されている。図6に示す実施例は、燃料側ガス拡散室72と水素ガス室73をプロトン伝導体70で仕切って分離させた例を示すものである。

このプロトン伝導体70は、発電部69と同様の構成を備えており、 高分子電解質膜であるプロトン伝導体膜84と、このプロトン伝導体膜 84の両面に設けられた第一の触媒85及び第二の触媒86を有してい る。更に、第一の触媒85の燃料側ガス拡散室72に臨む面には第一の 電圧印加用電極が設けられ、第二の触媒86の水素ガス室73に臨む面 には第二の電圧印加用電極が設けられている。これら第一及び第二の電 圧印加用電極間では、その電圧の印加方向を選択的に変更可能とされて いる。従って、第一の電圧印加用電極の印加電圧を第二の電圧印加用電 極の印加電圧よりも高くすることができ、これとは逆に、第二の電圧印 加用電極の印加電圧を第一の電圧印加用電極の印加電圧よりも高くする こともできる。

25 プロトン伝導体膜84は、開口部83の全体を完全に塞ぐように燃料 電極側セパレータ67の内側に固定されている。これにより、プロトン

10

15

20

伝導体膜84の一面に配された第一の触媒85が発電に供される燃料ガスが供給される燃料側ガス拡散室(第一の水素流路又は水素室)72に対向され、その他面に配された第二の触媒86が水分の搬送に供される燃料ガスが供給される水素ガス室(第二の水素流路又は水素室)73に対向されている。

このような構成を有する燃料電池 65 の作用を概略説明すると、例えば、次のようなものである。図 6 において、燃料電池 65 の水素供給口 76 に対して燃料ガスを供給すると共に、酸素供給口 74 に対して空気を供給する。この場合、酸素供給口 74 が大気に開放されているものである場合には、大気中から自動的に空気が供給される。その結果、燃料電極側セパレータ 67 内のアノード側では水素 (H_2) がプロトン (H^+) と電子 (e^-) に分解され、酸化剤電極側セパレータ 66 内のカソード側では酸素 (O_2) とプロトン伝導体膜 78 を移動したプロトン (H^+) 及び外部回路を通ってきた電子 (e^-) が結合される。これにより、発電部 69 で発電された電子 (e^-) が電力として取り出される。

この際、発電部 69 のカソード側では、酸素(O_2)とプロトン(H^+)及び電子(e^-)が結合することにより、水が生成される($4H^++4e^-$) $O_2=2H_2O$)。この発電部 O_2 0 で生成された水は、酸化剤電極側セパレータ O_2 0 の触媒層 O_2 0 の形態で生成された水は、酸化剤電極側セパレータ O_2 0 の触媒層 O_2 0 に逆拡散される。そして、水分は触媒層 O_2 0 の触媒層 O_2 0 に必拡散される。そして、水分は触媒層 O_2 0 を通過して燃料電極側セパレータ O_2 0 の表面に染み出し、燃料側ガス拡散室 O_2 0 の水素中に蒸発する。これにより、燃料側ガス拡散室 O_2 0 の湿度が高くなり、その水分がガス拡散層を介してプロトン伝導体 O_2 0 に伝導される。

25 プロトン伝導体 7 0 に伝導された水分は、第一の触媒 8 5 からその内 部に染み込み、プロトン伝導体膜 8 4 を介して反対側の第二の触媒 8 6

20

25

に搬送される。この場合、プロトン伝導体膜84の両面に印加される電圧の印加方向を変えることにより、水分(H_2O)及びプロトン(H^+)の移動方向を変えることができる。即ち、図示するように、プロトン伝導体膜84の第一の触媒側電極の電圧を第二の触媒側電極の電圧よりも高くすることにより、水分(H_2O)及びプロトン(H^+)は、第一の触媒85(+極)側から第一の触媒86(-極)側に伝導される。このとき、発電部69側の湿度は低くなり、その燃料ガスは乾燥される傾向になる。

これとは逆に、プロトン伝導体膜84の第二の触媒側電極の電圧を第一の触媒側電極の電圧よりも高くすることにより、水分(H₂O)及びプロトン(H⁺)は、十極となる第二の触媒86側から一極となる第一の触媒85側に伝導される。このとき、発電部69側の湿度は高くなり、その燃料ガスは湿潤される傾向になる。従って、プロトン伝導体膜84の電圧の印加方向を制御することにより、水分及びプロトンの移動方向を変更させて発電部69における燃料ガスの湿度を調整することができる。

尚、プロトン伝導体膜84に代えて水分搬送体を用いることによっても、燃料ガスの湿度を調整することができる。この場合、水分搬送体では電圧の印加が行われず、湿度差による自然拡散を用いて水分を移動させる湿度調整が行われる。この水分搬送体は、表面に接触する水分を吸収してその水分を保持するのではなく、湿度が高い側から低い側に水分を搬送して反対側の面から排出する機能を有するものである。例えば、燃料側ガス拡散室72内の湿度が水素ガス室73内の湿度よりも高くなると、その水分が水分搬送体を介して水素ガス室73内に染み出す。その染み出し量が所定量を超えることにより、その水分がまとまって滴となり、水素ガス室73から、例えば外部に放出され、或いは他の発電セ

15

20

ルの水分調整に供される。

このようなプロトン伝導体70(或いは水分搬送体)による水素の湿度制御が繰り返されることにより、発電部69で水が連続的に生成される場合にも、その発電部69における水素の湿度を調整して、発電に最適な湿度の燃料ガスを発電部69に供給することができると共に、余分な水分を発電部69から除去することができる。

このように、本実施例の燃料電池65によれば、プロトン伝導体70 (又は水分搬送体)を燃料電極側セパレータ67側に設けたために、発電時における燃料電池65内部の湿度を一定の適正な状態に維持することができ、常に最適な状態で発電部69による発電動作を連続させることができる。

図7は、図6に示した燃料電池65の他の具体的な構成例を示す説明図である。図7において、図6と同一部分には同一の符号を付している。また、図8は、図7に示す燃料電池65の変形実施例である燃料電池88を示すものである。

図7の燃料電池65および図8に示した燃料電池88は、多数の発電部と1個(或いは1組)のプロトン伝導体70で構成したものである。前述したような構成を有する複数個の酸化剤電極側セパレータ66と、これと同数の燃料電極側セパレータ67が交互に重ね合わされ、最後の燃料電極側セパレータ67の一面に第三のセパレータ68が積層されている。

図8に示した燃料電池88では、これらセパレータ積層体が、横に向けられた状態で1個のプロトン伝導体70に載置されている。そして、プロトン伝導体70が第四のセパレータ89に載置されている。横並べ25 とされたセパレータ積層体に対して、上方から燃料である水素が供給され、空気は側方から供給されている。そして、発電部で発電動作に供さ

10

15

20

25

れた後の余分な水分が、プロトン伝導体 7 0 の下方から側方に排出される構成となっている。かかる構成とすることによっても、前記実施例と同様の効果を得ることができる。

また図9は、図6に示した燃料電池65の変形例である燃料電池95 の構成を示す断面図である。燃料電池95は発電部69と、プロトン伝 導体70と、水分搬送体91を備えた構成とされている。即ち、燃料電 池95は、互いに重ね合わされる酸化剤電極側セパレータ66、燃料電 極側セパレータ67及び第三のセパレータ68と、プロトン伝導体70 用の高分子電解質膜であるプロトン伝導体膜84と、水分搬送体の一具 体例を示す水分搬送体91とを備えて構成されている。

この水分搬送体91は、湿度差による自然拡散を用いて水分を移動させるようにしたもので、表面に接触する水分を吸収し、その水分を保持するのではなく、湿度が低い側に搬送して反対側の面から外部に排出する機能を有するものである。この水分搬送体91は、燃料電極側セパレータ69の内側に取り付ける構成としてもよい。水分搬送体91は、例えばプロトン伝導膜であるパーフルオロスルホン酸膜、ナフィオン膜(フッ素樹脂系) や多孔質セラミックス等を用いることができる。

酸化剤電極側セパレータ66と、燃料電極側セパレータ67と、両セパレータ66,67間に配設された発電部69と、第三のセパレータ68に取り付けられた水分搬送体91と、発電部69のプロトン伝導体膜78と酸化剤電極側セパレータ66及び燃料電極側セパレータ67間をシールするシール部材77とは、上述した図6の燃料電池65とそれぞれ同様である。そして、酸化剤電極側セパレータ66には酸素供給ロ74が設けられ、燃料電極側セパレータ67には水素供給ロ76が設けられている。

更に、燃料電極側セパレータ67の水分排出口である内側開口部83

にプロトン伝導体70が設けられている。このプロトン伝導体70は、発電部69と同様の構成を備えており、高分子電解質膜であるプロトン 伝導膜84と、このプロトン伝導体膜84の両面に設けられた第一の触 媒85及び第二の触媒86を有している。プロトン伝導体膜84は内側 閉口部83を閉じるように燃料電極側セパレータ67の内側に取り付け られており、その一面に配された第一の触媒85が発電に供される燃料 ガスの供給されるガス拡散層72に対向され、その他面に配された第二 の触媒86が水分持出し用に供される燃料ガスの供給される水素ガス室 73に対向されている。

10 また、第三のセパレータ68は、シール部材77を介して燃料電極側セパレータ67と重なり合うように設けられ、3個のセパレータが全体として三層構造とされている。第三のセパレータ68には、水分の排出口である外側開口部92が設けられている。この第三のセパレータ68の内面に、外側開口部92を塞ぐように水分搬送体91が接着剤、挟持その他の固着手段によって取り付けられている。そして、第三のセパレータ68の側部には、プロトン伝導体70を伝導して第三のセパレータ68側に染み出した水分を外部に持ち出すための水分持出用燃料が供給される水素供給口76が設けられている。

このような構成を有する燃料電池95では、図6を用いて説明したの20 と同様の発電反応とプロトン伝導体70による水分の反応が行われて、プロトン伝導体70の電圧の印加方向を制御することにより、水分及びプロトンの移動方向を変更させて発電部69における燃料ガスの湿度を調整することができる。

このように、プロトン伝導体 7 0 の触媒層 8 6 の湿度が高くなり、第 25 三のセパレータ 6 8 で囲まれた水素ガス室 7 3 内の湿度が高くなると、 その水分が水分搬送体 9 1 内に染み込む。そして、水分搬送体 9 1 内の

10

15

20

湿度がある程度高くなり、外気と接触している表面に水分が染み出し、 その染み出し量が所定量を超えることにより、その水分がまとまって滴 となり、外部に放出される。

また、水分搬送体91に伝達された水分は、その内部に染み込んで反対側の面まで伝導され、その面に染み出して外気に接触される。水分搬送体91と接触する外気の湿度は、第三のセパレータ68内部の湿度よりも低いため、水分搬送体91に含まれる水分は外気中に放出されることになる。このようなプロトン伝導体70及び水分搬送体91における水分の伝導が繰り返されることにより、発電部69で水が連続的に生成される場合にも、その湿度を調整して最適な湿度の燃料ガスを発電部69に供給すると共に、余分な水分を外部に排出することができる。

このように、本実施例の燃料電池95によれば、プロトン伝導体70 及び水分搬送体91を燃料電極側セパレータ67側に設けることにより、 発電時に燃料電池65内部で生成される水分を燃料電極側セパレータ6 9側から外部に放出し、発電時における燃料電池95内部の湿度を一定 の適正な状態に維持することができ、常に最適な状態で発電動作を連続 させることができる。

図10A~図16Bには、上述したような発電部にプロトン伝導体を 組み合わせて構成される発電セルの他の実施例を示す。図10Aは、図 1に示した第四の発電セル18と略同様の構成を有するもので、酸化剤 電極側セパレータ23の酸素取入れ方式を大気開放式とした実施例であ る。この発電セル100は、発電部19とプロトン伝導体20を備えて 構成されている。

燃料電極側セパレータ24と第三のセパレータ28は、水素を流通さ 25 せる水素配管120で連通されていて、両セパレータ24,28のどち ら側からも他方に対して水素が供給できるようにされている。尚、第三

のセパレータ28及び水素配管120については、吸湿性の材料を用いることができ、また、結露トラップ等のように外部に水素を排出できる構造とすることもできる。

図10Bは、図10Aに示した発電セル100の変形例を示すもので、酸化剤電極側の酸素取入れ方式を空気圧送式としたものである。この発電セル101は、酸化剤電極側セパレータ121を有する発電部19Aを備えている。酸化剤電極側セパレータ121の内面には、空気(酸素)が圧送される多数の連通溝122が設けられている。他の構成は、発電セル100と同様である。

10 図11Aに示す発電セル102は、図10Bに示す発電セル101の うち、燃料電極側セパレータ24に上下の電極25,30を貼り合わせる等して一体化させて燃料電極側セパレータ123を構成し、同じく酸 化剤電極側セパレータ121に集電板電極26を一体化させて酸化剤電 極側セパレータ121に集電板電極26を一体化させて酸化剤電 極側セパレータ124を構成し、更に、第三のセパレータ28に電極315 1を一体化させて第三のセパレータ125を構成したものである。これにより、各セパレータ123,124,125を介して集電機能や電圧の 印加等が行えるように構成されている。

更に、酸化剤電極側セパレータ124の機能に合わせて燃料電極側セパレータ123及び第三のセパレータ125を、空気圧送式に適合する構成としている。そして、プロトン伝導体20の燃料電極側セパレータ123と第三のセパレータ125を水素配管120で連通することにより、両セパレータ123,125間において互いに水素を流動させることができるようにしている。この実施例によれば、発電セルの部品点数を削減して装置の薄型化、小型化を図ることができる。

図11Bに示す発電セル103は、図10Aに示す発電セル100の

10

うち、燃料電極側セパレータ24の上下に電極25,30を貼り合わせる等して一体化させて集電板126を構成し、発電セル103の構造の簡略化を図ったものである。集電板126は水素配管120を介して第三のセパレータ28と連通されている。この実施例の場合、燃料ガスである水素は、集電板126及び第三のセパレータ28から発電部19及びプロトン伝導体20に供給される。

図12に示す発電セル104は、発電部19Aに供給される燃料ガスの湿度制御を、プロトン伝導体20Aと水分搬送体127の2つの水素ガス湿度制御装置で行うようにしたものである。発電部19Aの下側にプロトン伝導体20Aが配置され、その下側に水分搬送体127が配置されている。この発電セル104では、発電部19Aのプロトン伝導体膜電極接合体22の湿度調整がプロトン伝導体20Aによって行われ、更に、プロトン伝導体20Aの湿度調整が水分搬送体127によって行われる。

15 更に、プロトン伝導体20Aは、発電部19Aの燃料電極側セパレータを兼ねる燃料電極側セパレータ24と、第三のセパレータ128と、両セパレータ24,128間に介在されたプロトン伝導体膜電極接合体29及びその上下に配置された電極30,31とから構成されている。そして、燃料電極側セパレータ24と第三のセパレータ128は、水素20 配管120により連通されて水素ガスが移動できるように構成されている。

また、水分搬送体127は、プロトン伝導体20Aの第三のセパレータ128と、大気が供給される第四のセパレータ129と、両セパレータ128,129間に介在された水分搬送体130及びその上下に配置 25 された多孔質板131,132とから構成されている。水分搬送体130には触媒が無いため、集電効果がいらないことから多孔質板131,

10

15

20

132は必ずしも必要とされるものではない。

図13A~図16Bに示す発電セル105,106,107,108, 109,110,111及び112は、発電部19A,19Bのプロトン伝導体膜電極接合体22に対して、プロトン伝導体137,137A, 137B,138のプロトン伝導体膜電極接合体139の総面積の比が小さくなるように構成したものである。

図13Aに示す発電セル105は、発電部19Bとプロトン伝導体137とから構成されている。発電部19Bは、酸化剤電極側セパレータ121と、燃料電極側セパレータ135と、プロトン伝導体膜電極接合体22と、酸化剤電極側セパレータ121とプロトン伝導体膜電極接合体22との間に介在された集電板電極26と、プロトン伝導体膜電極接合体22と燃料電極側セパレータ135との間に介在された電極133とから構成されている。そして、一方の電極133には、プロトン伝導体膜電極接合体22の触媒層の全面に渡って水素を展開させるために九十九折状に延在された連通溝134が設けられている。

また、プロトン伝導体137は、燃料電極側セパレータ135、第三のセパレータ142とを有し、これらセパレータ135,142間に1個の小型のプロトン伝導体137が設けられている。プロトン伝導体137は、プロトン伝導体膜電極接合体139と、その両面に配置された電極140,141とから構成されている。そして、プロトン伝導体膜電極接合体139の面積は、発電部19Bのプロトン伝導体膜電極接合体22の面積に比べて大幅に小さい構成とされている。

このように、発電部19Bの大きさに比べてプロトン伝導体137の 大きさを小さくすることによっても、発電部19Bにおける水素ガスの 25 湿度制御を行うことができる。特に、プロトン伝導体137を小型に構 成する場合には、発電部19Bの任意の場所における湿度制御を集中的 に行うことができる。そのため、この実施例によれば、1個の発電部19Bにおいて、例えば、上流側と下流側とで湿度差が大きい場合に、その湿度が高い側のみ(或いは低い側でもよい。)を集中的に湿度制御できるという利点がある。

- 更に、プロトン伝導体137は、プロトンポンプとしてのポンプ容量に見合った大きさのプロトン伝導体膜電極接合体139を有し、そのプロトン伝導体膜電極接合体139は、中央に配置されたプロトン伝導膜と、その上下両面に設けられた触媒層とから構成されている。このプロトン伝導体膜電極接合体139に対応して、燃料電極側はセパレータ1
 35に、その大きさに見合った大きさを有する水素取入口136が設けられ、第三のセパレータ142には、同様の大きさを有する収納凹部143が設けられている。そして、両セパレータ135,142には、水素取入口136又は収納凹部143と連通される水素流路がそれぞれ設けられている。
- 15 また、第三のセパレータ142には、プロトン伝導体137でポンプ された湿度の高い水素の逆流を防止するための逆止弁144が設けられ ている。この実施例によれば、小型のプロトン伝導体を用いてポンプ作 用を行わせることができ、発電効率の低下をより少なくすることができる。尚、逆止弁144は無くてもよい。
- 20 図13Bに示す発電セル106は、発電部19Bのプロトン伝導体膜電極接合体22に比べてプロトン伝導体137Aのプロトン伝導体膜電極接合体139が大幅に小さい2個のプロトンポンプを用いて水素ガスの湿度制御を行うようにしたものである。この実施例に示す発電セル106が図13Aに示す発電セル105と異なるところは、プロトン伝導体膜電極接合体139等が2個に増えたことと、これに対応して、燃料電極側セパレータ135Aに2個の水素取入口136,136を設ける

10

15

20

25

と共に、第三のセパレータ142Aに2個の収納凹部143A, 143 Bを設けた点である。他の構成は、上記実施例と同様である。

図14Aに示す発電セル107は、図13Bに示す発電セル106の下に下部発電部19Cを設けた実施例である。下部発電部19Cは、上部発電部19Bと同様の構成を有しているが、その積層順序が逆に設定されていて、上部発電部19Bを逆さまにした状態で燃料電極側セパレータ135Aの下に配置されている。この実施例では、上下2個の発電部19B,19Cが水素の供給側を中心に上下に対向するように配設されているため、酸化剤側電極も同様に対向させることができる。従って、水素の両側から酸素を供給することにより、水素極の結露を防ぐための保温効果にも役立つという利点がある。

図14Bに示す発電セル108は、図13Bに示す発電セル106のプロトン伝導体137Bに多数のプロトン伝導体を設けた実施例である。これに対応して、燃料電極側セパレータ135Bには同じ数の水素取入口136が設けられ、第三のセパレータ142Bには同じ数の収納凹部143が設けられている。この実施例では、発電部19Aに対して水素の循環路を随時切り替え可能とすることができ、これにより、発電部19Aにおける随所の湿度制御(除湿及び加湿)を独立に行うことができる。更に、水素流路の上流、中流及び下流の入れ替えを行うこともできる。

図15A及び図15Bに示す発電セル109、110は、図13Aに示す発電セル106の変形実施例を示すもので、水素ガス湿度制御装置として水分搬送体を用いたものである。水分搬送体は、一例として触媒の無いプロトン伝導体膜145の両面に配置された多孔質板146,147とから構成されている。他の構成は、図13Aに示す実施例の発電セル106と同様であるため、それら

10

15

20

の説明は省略する。尚、図15Aは、水素が燃料電極側セパレータ135から発電部19Bに供給される場合を示している。また、図15Bは、水素が第三のセパレータ142からプロトン伝導体膜145に供給され、更に、燃料電極側セパレータ135を介して発電部19Bに供給される場合を示している。

図15Aに示す実施例によれば、小型の水分搬送体を用いて水分の自然拡散による水分搬送を行うことができる。従って、発電部19Bで発電された電気を水分調整に用いないため、発電効率の低下を防ぐことができる。また、図15Bに示す実施例によれば、小型の水分搬送体に水素を供給して水分を強制的に拡散させ、積極的な水分搬送を行うことができる。更に、図15A及び図15Bに示す実施例では、触媒がないことによる印加電流がないため、集電板の使用を廃止して構成の簡略化を図ることができるという利点がある。

図16Aに示す発電セル111は、図15Bに示す発電セル110の変形実施例を示すものである。即ち、発電セル110の水分搬送体138の下側に、上述したプロトン伝導体137が配設され、これらを重ね合わせることによって発電セル111が構成されている。また、図16Bに示す発電セル112は、図13Aに示す発電セル105の変形実施例を示すものである。即ち、発電セル105のプロトン伝導体137の下側に、同様の構成を有する第二のプロトン伝導体137Cが配設されて、これらを重ね合わせることによって発電セル112が構成されている。

これらの実施例では、発電部19Bに対して、水素と湿度の循環制御を上部の水分搬送体138又はプロトン伝導体137を用いて行い、更に、その水素の湿度の増減調整を、下部のプロトン伝導体137又はプロトン伝導体137Cで行うようにしている。他の構成は、同図の実施

例と同様であるため、それらの説明は省略する。更に、図10A~図16Bに示す実施例において、発電部並びにプロトン伝導体及び水分搬送体の作用は、図1等で述べたことと同様であるため、ここでの説明は省略する。

本発明の第14の実施例の燃料電池は、アノード(陽極)で水素(H $_2$)をプロトン($_2$ H $^+$)と電子($_2$ e $^-$)に分解し、このときに生じる電子の一部を電気として取り出すものである。この際、カソード(陰極)では、酸素($_2$)と電解質膜を移動したプロトン及び外部回路を通ってきた電子とが結合し、水が副産物として生成される。

10 燃料電池に用いられるプロトン伝導膜がプロトンを移動させるためには水が必要であるので、この生成水を拡散性電極内部に拡散させ、プロトンの伝導率を高めるために積極的に活用されている。その一方、生成水が拡散性電極内部で過剰になると、生成水が酸素の移動を妨げることになり、その結果、燃料電池の発電が阻害されることになる。そのため、
 15 燃料電池で安定な発電動作を連続させるためには、プロトン伝導膜の水分を常に一定範囲内に保つことが重要になる。

また、本発明の燃料電池の湿度制御方法は、燃料電池に用いられる燃料ガス (特に水素) の湿度を制御するもので、水及び/又は水蒸気を通すが燃料ガスを通さない水分搬送体が用いられる。ここで、水分搬送体について概説すると、次のようなものである。

水分搬送体は、湿度差による自然拡散を用いて対象物を移動させることを目的とするもので、移動対象物は水分である。この水分搬送体を透過する水分の移動量は、例えば、エアの流量、エアの湿度や温度等を制御することによって調整することができる。

25 尚、燃料ガスとしては、純粋の水素のみからなる水素ガスばかりでな く、成分の一部に水素を含む水素混合ガス(例えば、メタン、メタノー

10

15

20

ル、プロパン、ブタン、ガソリン等)を用いることができる。即ち、高 圧ボンベや液体水素タンク、水素吸蔵合金等を用いて水素そのものを供 給する方法の他、天然ガス(メタン)、メタノール等の既存の炭化水素 系燃料を改質して水素リッチな改質ガスを供給する方法等が用いられる。 また、酸素の供給も同様であり、空気を供給する方法の他、酸素そのも のを供給する方法を用いることもできる。

図18は、本発明の燃料電池に係る実施例の原理を説明する図である。 この実施例として示す燃料電池265は、発電部266と、水分搬送体 267とで構成したものである。即ち、燃料電池265は、互いに重ね 合わされる酸化剤電極側セパレータ268及び燃料電極側セパレータ2 69と、発電部266用の高分子電解質膜であるプロトン伝導膜270 と、水分搬送体267を備えて構成されている。

酸化剤電極側セパレータ268及び燃料電極側セパレータ269は、 重ね合わせることによって内部に適当な大きさの空間部が形成される部 材からなり、その空間部に発電部266用のプロトン伝導膜270が保 持されている。これらセパレータ268,269の材質としては、例え ば、非伝導性のセラミックスやプラスチック等を適用できることは勿論 のこと、伝導性を有するアルミニウム合金、ステンレス合金、或いはカ ーボン材等を適用することもできる。図18に示す実施例は、酸化剤電 極側セパレータ268及び燃料電極側セパレータ269を共に伝導性の 材料で形成したものであり、この場合、各セパレータ268,269と プロトン伝導膜270との間には、それぞれ絶縁性のシール部材272 を介在させるようにするとよい。

上側に配される酸化剤電極側セパレータ268には、空気が供給され 25 る酸素供給口273が設けられている。また、下側に配される燃料電極 側セパレータ269には、燃料が供給される水素供給口274が設けら

10

15

20

25

れている。更に、燃料電極側セパレータ269の略中央部には、燃料電池265の内部で発生した水分を外部に排出するための水分排出口275が設けられている。この水分排出口275を覆うように燃料電極側セパレータ269の外面には、水分搬送体267であるプロトン伝導膜が接着剤、挟持その他の固着手段によって取り付けられている。

この水分搬送体267は、湿度差による自然拡散を用いて水分を移動させるようにしたもので、表面に接触する水分を吸収し、その水分を保持するのではなく、湿度が低い側に搬送して反対側の面から外部に排出する機能を有するものである。この水分搬送体267は、燃料電極側セパレータ269の内側に取り付ける構成としてもよい。水分搬送体267は、例えばプロトン伝導膜であるパーフルオロスルホン酸膜、ナフィオン膜(フッ素樹脂系)や多孔質セラミックス等を用いることができる。

また、発電部266のプロトン伝導膜270の両面、即ち、酸化剤電極側セパレータ268側の面には触媒層276が設けられ、燃料電極側セパレータ269側の面には触媒層277が設けられている。各触媒層276,277の材質としては、例えば、白金や白金・ルテニウム等の触媒を用いることができる。更に、各触媒層276,277の外側には、それぞれガス拡散層278,279が設けられている。これらガス拡散層278,279の材質としては、例えば、カーボンクロス、カーボンペーパー等を用いることができる。

図19は、図18に示した燃料電池265の一実施例の概略構成を示す説明図であり、同一部分には同一の符号を付している。燃料電池265は、上述した2個のセパレータ268,269に加えて第三のセパレータ280を有しており、この第三のセパレータ280と燃料電極側セパレータ269で水分搬送体267としてのプロトン伝導膜が挟持されている。

10

15

20

更に、第三のセパレータ280には、水分搬送体267を伝導して第三のセパレータ280側に染み出した水分を外部に持ち出すための水分持出用空気が供給される空気供給口281が設けられている。この空気供給口281から注入された水分持出用空気は、第三のセパレータ280と水分搬送体267との間の供給路282を通って外部に取り出される。

図19に示す符号283は、燃料電極側セパレータ269と第三のセパレータ280との間を封止するシール部材である。また、符号284は、水分搬送体267の両面に設けた補強材である。この補強材284は、例えば、ポーラスな網目状のガーゼのような材料からなり、水分の持ち出し量の調整、或いはシール部材283を用いたことによる水分搬送体267と第三のセパレータ280との間の隙間調整等を目的として用いられている。

このような構成を有する燃料電池 2 6 5 の作用を概略説明すると、例えば、次のようなものである。図18において、燃料電池 2 6 5 に対して、水素供給口274からアノード側の燃料電極側セパレータ269内に燃料を供給すると共に、酸素供給口273からカソード側の酸化剤電極側セパレータ268内に空気を供給する。これにより、アノードでは水素(H2)がプロトン(2H+)と電子(2e-)に分離し、カソードでは酸素(O2)とプロトン伝導膜270を移動したプロトン(2H+)及び外部回路を通ってきた電子(2e-)とが結合される。これにより、発電部266で発電された電子(2e-)の一部が電力として取り出される。

この際、発電部 2 6 6 の酸化剤電極側セパレータ 2 6 8 内では、酸素 (O_2) とプロトン $(2 H^+)$ 及び電子 $(2 e^-)$ が結合することにより、水が生成される $(4 H^+ + 4 e^- \rightarrow 2 H_2 + O_2 = 2 H_2 O)$ 。この発電部

10

15

20

25

266で生成された水は、酸化剤電極側セパレータ268側の触媒層276及びプロトン伝導膜270を伝導して燃料電極側セパレータ269側の触媒層277に逆拡散される。そして、触媒層277を通過して燃料電極側セパレータ269側の表面に染み出す。これにより、燃料電極側セパレータ269内部の湿度が高くなり、その水分がガス拡散層279を介して水分搬送体267に伝達される。この場合、排出されるものは、液体としての水ではなく、水蒸気であってもよいことは勿論である。

また、水分搬送体267に伝達された水分は、その内部に染み込んで反対側の面まで伝導され、その面に染み出して外気に接触される。水分搬送体267と接触する外気の湿度は、燃料電極側セパレータ269内部の湿度よりも低いため、水分搬送体267に含まれる水分は外気中に放出されることになる。このような水分の伝導が繰り返されることにより、発電部266で水が連続的に生成される場合にも、その水を外部に連続的に排出することができる。従って、燃料電極側セパレータ269に水分排出口275を形成して水分搬送体267を設けることにより、発電時に燃料電池265内部で生成される水分を燃料電極側セパレータ269側から外部に放出し、燃料電池265内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができる。

この場合、図19の実施例では、水分搬送体267に伝導された水分は、これを伝導して第三のセパレータ280側で排出気体である水分持ち出し用の空気に放出される。そして、空気供給口281から供給される水分持出し用の空気により、第三のセパレータ280に形成された流路を通って外部に持ち出される。従って、発電時に燃料電池265内部で生成される水分を外部に放出し、燃料電池265内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができる。

図20は、図18及び図19に示した実施例に係る燃料電池265を

10

15

20

25

二層構造とした例の概略構成を示す説明図である。この図20において、図18及び図19と同一部分には同一の符号を付して、それらの説明を省略する。燃料電池265は、上述した2個のセパレータ268,269,287に加えて2個の中間セパレータ294,295を有している。

酸化剤電極側セパレータを兼ねる第一の中間セパレータ294は燃料電極側セパレータ269の下側に配置され、第一の中間セパレータ294 の下側に第二の中間セパレータ295が配置されている。第二の中間セパレータ295は燃料電極側セパレータを兼ねており、この第二の中間セパレータ295の下側に第三のセパレータ287が配置されている。

また、酸化剤電極側セパレータ268と燃料電極側セパレータ269との間に第一の発電部266が配設され、燃料電極側セパレータ269と第一の中間セパレータ294との間に第一の水分搬送体267が配設されている。更に、第一の中間セパレータ294と第二の中間セパレータ295との間に第二の発電部296が配設され、第二の中間セパレータ295と第三のセパレータ287との間に第二の水分搬送体297が配設されている。そして、第一の中間セパレータ294には、発電用の酸素と水分持出し用の空気を兼ねる空気を供給するための兼用供給口298が設けられている。また、第二の中間セパレータ295には、第二の発電部296に対して燃料ガスである水素を供給するための第二の水素供給口299が設けられている。

第二の発電部296は第一の発電部266と同様の構成を有するものであり、また、第二の水分搬送体297は第一の水分搬送体267と同様の構成を有するものである。しかしながら、第一の発電部266と第二の発電部296の構成、及び第一の水分搬送体267と第二の水分搬送体297の構成は、共に異なる構造のものであってもよいことは勿論である。また、第一及び第二の中間セパレータ294、295の材質と

しては、燃料電極側セパレータ269等と同様に、例えば、非伝導性の セラミックスやプラスチック等を適用できることは勿論のこと、伝導性 を有するアルミニウム合金、ステンレス合金等を適用することもできる。

図20に示すように、発電部及び水分搬送体が複数個積み重ねられた 多層構造の燃料電池265の作用を概略説明すると、次のようなもので ある。第一の発電部266及び第二の発電部296における発電動作は、 上述した図20の説明と同様であり、各発電部266及び296におい て個別に発電が行われ、それぞれで発電された電気が電気回路を介して 一まとめにされて外部に取り出される。

10 この場合、兼用供給口298から供給される水分持出しを兼ねる発電用の空気は、燃料電極側セパレータ269内部よりも湿度が低いため、第一の発電部266で発生した余分な水分は、第一の水分搬送体267の働きによって第一の中間セパレータ294側に持ち出される。第一の水分搬送体267によって第一の中間セパレータ294側の空気中に放出された水分は、第一の中間セパレータ294に形成された流路を通って外部に持ち出される。従って、発電時に第一の発電部266内部で生成される水分を外部に放出し、第一の発電部266内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができる。

また、空気供給口293から供給される水分持出し用の空気は、第二 の中間セパレータ295内部よりも湿度が低いため、第二の発電部29 6で発生した余分な水分は、第二の水分搬送体297の働きによって第 三のセパレータ287側に持ち出される。第二の水分搬送体297によって第三のセパレータ287側の空気中に放出された水分は、第三のセパレータ287に形成された流路を通って外部に持ち出される。従って、 25 発電時に第二の発電部296内部で生成される水分を外部に放出し、第二の発電部296内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持すること ができる。

5

図18乃至図20では、水分搬送体267や第二の水分搬送体297を燃料電池の発電部266や第二の発電部に隣接する位置に形成した例を示しているが、発電部から離れた位置であっても、燃料ガスが流れる燃料流路上に取り付けられて、水分持ち出し用の空気と接触するとしてもよい。水分搬送体267や第二の水分搬送体297が燃料ガスと水分持ち出し用の空気との間で水分の搬送を行うことで、発電時に発電部で生成される水分を外部に放出し、発電部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができる。

10 次に、図20に示す実施例に基づく試験モデルを製作して行った試験について説明する。この試験は、水素側の水分管理に水分搬送体を用いてパッシブな仕組みとして行ったものということができる。この試験モデルの構造の概略は図20に示す通りであり、2箇所の水分搬送体としてナフィオン膜を使用した。

この試験モデルの発電部で生成された水分は、ナフィオン膜を通して外気と同じ湿度バランスを保つように移動するため、水素供給部に水が溜まることはない。このナフィオン膜と第二の発電部とを重ね合わせ、その間に空気供給路を設けることにより、空気の供給を共用させてスタック構造を構成することができる。また、試験モデルのすべての燃料供20 給路及び空気供給路の末端部分をクローズしてポンプで燃料及び空気を圧送する機構とすれば、水素側及び空気側の水分持出量を独立して制御することができ、従って、更に精密な湿度制御が可能となる。

尚、図20の実施例において、第三のセパレータ287に開口部を設け、その開口部を覆う水分搬送体267から水分を外部に排出する構成 25 としてもよいことは勿論である。また、1個の燃料電池を構成する積層 された発電部及び水分搬送体の数は、この実施例に限定されるものでは

15

20

なく、3個以上適当な数を重ね合わせることができるものである。

図21は、試験モデルにより得られた出力特性を示すグラフであり、 縦軸にセル電圧(V)を取り、横軸に時間(sec)を取っている。発 電部及び水分搬送体の高分子電解質膜電極接合体(MEA)としては2 2.5 cm²の大きさのものを1枚使用した。試験条件は、3A(アンペア)の電流を連続して流し、室温と同程度となるよう送風ファンで冷 却した。その結果、図21では、次のような事項が明らかになった。

図21において、運転直後の t 1 点から t 2 点(約250 s e c)までの電圧変化は、セットアップ時における各種電子機器、部品等の性能が安定するまでの変動によるものである。また、 t 3 点(約1500 s e c)から t 4 点までの落ち込みは、測定条件の設定のために生じた電圧変動であり、本試験の計測領域外のものである。この非計測領域(t 3 点から t 4 点まで)を除く、計測領域(t 2 点から t 3 点まで及び t 4 点から t 5 点まで)の全体としては終始安定した電圧出力(約0.62 t 2 t 2 t 3 が得られた。

図22は、電流4Aで8時間の連続運転を行ったときの最後の約2時間におけるセル電圧と内部抵抗との関係を示すグラフである。この試験は、第一の発電セル(V11,R1)と第二の発電セル(V12,R2)の2個について行った。この電圧(V)ー抵抗(Ω)グラフによれば、第一の発電セルでは、電圧出力(V11)は約0.640Vであり、内部抵抗(R1)は約0.0170(Ω)であった。また、第二の発電セルでは、電圧出力(V12)は約0.634Vであり、内部抵抗(R2)は約0.0180(Ω)であった。

この結果から明らかなように、電圧の偏差は±1mV、抵抗値は0.
25 1mQに収まっており、安定した運転が維持できていることを確認することができた。この間、水素パージは必要なく、また、燃料供給路等に

10

15

20

おける結露や燃料不足の不具合は発生していなかった。

図23は、上記試験における電流 (A)と電圧 (V)の関係を示すグラフである。この試験は、第一の発電セル及び第二の発電セルについて、それぞれ2回ずつ試験した。このI-V(電流-電圧)特性のグラフによれば、第一の発電セル(記号●と○)及び第二の発電セル(記号■と□)のいずれにおいても、7アンペア(A)程度の電流まで問題なく出力できることを確認することができた。

図21乃至図23に示したように、水分搬送体が燃料ガスと排出気体に接触し、燃料ガスと排出気体との間での水分搬送を行うことにより、燃料ガスが排出気体よりも高湿度な場合には燃料ガス側から排出気体側への水分の移動が行われ、燃料ガスが排出気体よりも低湿度な場合には排出気体側から燃料ガス側への水分の移動が行われる。したがって、燃料電池での発電によって生成した水分によって、発電セルの発電に適さない湿度状態になったとしても、排出気体と燃料ガスとの間での水分搬送が繰り返されることによって、燃料電池の内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができ、良好な発電を継続して行うことがわかる。

以上説明したが、本発明は上記実施の例に限定されるものではなく、例えば、酸化剤としての酸素の供給方法については、上述した大気開放式及び空気圧送式に限定されるものではない。このように、本発明は、その趣旨を逸脱しない範囲で種々に変更できるものである。

産業上の利用可能性

以上説明したように、本出願の請求項1に記載の水素ガス湿度制御装 25 置によれば、第一の水素流路又は水素室と第二の水素流路又は水素室を 水分搬送体によって分離させる構成としたため、2つの水素流路又は水 素室内の水及び/又は水蒸気の割合が異なる場合には、その割合が高い 方から低い方に水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気を搬送すること ができる。これにより、2つの水素流路又は水素室間における水及び/ 又は水蒸気の割合を同じくするように水素湿度を制御することができる という効果が得られる。

本出願の請求項2に記載の水素ガス湿度制御装置では、水素ガスが、 燃料改質により発生した水素ガスであり、水蒸気改質等により発生する 水素は、水分を多く含むため、水分が不足する状況を回避し易いという 好ましい効果が得られる。

- 本出願の請求項3に記載の水素ガス湿度制御装置によれば、第一の水 素流路又は水素室と第二の水素流路又は水素室をプロトン伝導体によっ て分離させる構成としたため、2つの水素流路又は水素室内の水及び/ 又は水蒸気の割合が異なる場合には、その割合が高い方から低い方に、 或いは低い方から高い方にプロトン伝導体を介して水及び/又は水蒸気
 が搬送される。また、その割合が同じ場合であっても、一方から他方に プロトン伝導体を介して水及び/又は水蒸気が搬送される。これにより、 2つの水素流路又は水素室間における水及び/又は水蒸気の割合を同じ くしたり、任意の割合に設定するように水素湿度を自由に制御すること ができるという効果が得られる。
- 20 本出願の請求項4に記載の水素ガス湿度制御装置によれば、プロトン 伝導体の第一の水素流路又は水素室に臨む面と第二の水素流路又は水素 室に臨む面の少なくとも一方に触媒を配置される構成としたため、その 触媒によって水素をプロトンに分離させ、また、プロトンを水素に転換 させることができるという効果が得られる。
- 25 本出願の請求項 5 に記載の水素ガス湿度制御装置によれば、第一の水 素流路又は水素室には第一の電圧印加用電極を設け、第二の水素流路又

10

は水素室には第二の電圧印加用電極を設けて、これら電極間にプロトン 伝導体を挟持させるとしたため、これらでプロトンポンプを構成して水 素ガスの湿度制御を行うことができる。従って、水素流路又は水素室内 の水素湿度を最適な状態に保つための加湿・除湿装置、湿度センサ、減 圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、流量コントローラ等として用いる ことができるという効果が得られる。

本出願の請求項6に記載の水素ガス湿度制御装置によれば、第一の電 圧印加用電極と第二の電圧印加用電極の間に電圧を印加させる構成とし たため、プロトン伝導体を介してプロトンを電圧の高い側から電圧の低 い側に向けて移動させることができるという効果が得られる。

本出願の請求項7に記載の水素ガス湿度制御装置によれば、触媒として白金を用いる構成としたため、水素をプロトンに分離させ、或いは、プロトンを水素に転換させることを効率良く行うことができるという効果が得られる。

15 本出願の請求項 8 に記載の水素ガス湿度制御装置では、水素ガスが、 燃料改質により発生した水素ガスであり、水蒸気改質等により発生する 水素は、水分を多く含むため、水分が不足する状況を回避し易いという 好ましい効果が得られる。

本出願の請求項9に記載の燃料電池によれば、燃料電極側セパレータ 20 と酸化剤電極側セパレータとプロトン伝導体膜電極接合体とを有する1 個又は2個以上の発電セルと、水素ガス湿度制御装置とを備えた燃料電池において、水素ガス湿度制御装置の第一の支持板と第二の支持板との間に水分搬送体を挟持し、第一の支持板に水素と水及び/又は水蒸気の混合気体を接触し、第二の支持板に少なくとも水素を接触させる構成と したため、燃料が供給される水素流路又は水素室内の水素湿度が高い場合には余分な水及び/又は水蒸気を水分搬送体で低い側に伝導させて除

10

湿し、また、その水素流路又は水素室内の水素湿度が低い場合には水分搬送体で高い側から伝導させて加湿して、発電動作を効率良く継続させることができるという効果が得られる。

本出願の請求項10に記載の燃料電池によれば、燃料電極側セパレータと酸化剤電極側セパレータとプロトン伝導体膜電極接合体とを有する1個又は2個以上の発電セルと、水素ガス湿度制御装置とを備えた燃料電池において、水素ガス湿度制御装置の第一の電極と第二の電極との間にプロトン伝導体を挟持し、第一の電極に水素と水及び/又は水蒸気の混合気体を接触し、第二の電極に少なくとも水素が接触する構成としたため、両電極間に電圧を印加することにより、電圧の高い側から低い側に向けて水及び/又は水蒸気を移動させることができ、その電圧の印加方向を制御することで2つの水素流路又は水素室の水素湿度を調整し、発電動作を効率良く継続させることができるという効果が得られる。

また、本出願の請求項11に記載の水素ガス湿度制御方法によれば、 第一の電極と、第二の電極とでプロトン伝導体を挟持し、第一の電極と 第二の電極との間に電圧を加えることにより、燃料電池の燃料極に供給 されて第一の電極に接触する水素と、第一の電極に接触する水素とは異 なる湿度を有し第二の電極に接触する水素の間での水分の搬送を行うた め、電圧の高い側から低い側に向けて水及び/又は水蒸気を移動させる 20 ことができ、その電圧の印加方向を制御することで2つの水素流路又は 水素室の水素湿度を調整し、燃料電池での発電動作を効率良く継続させ ることができる。

また、水分搬送体が燃料ガスと排出気体に接触し、燃料ガスと排出気体との間での水分搬送を行うことにより、燃料ガスが排出気体よりも高 湿度な場合には燃料ガス側から排出気体側への水分の移動が行われ、燃料ガスが排出気体よりも低湿度な場合には排出気体側から燃料ガス側へ

の水分の移動が行われる。したがって、燃料電池での発電によって生成した水分によって、発電セルの発電に適さない湿度状態になったとしても、排出気体と燃料ガスとの間での水分搬送が繰り返されることによって、燃料電池の内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができる。燃料電池内部の湿度が常に適正な状態に維持できるため、発電部が乾燥しすぎることや水没することなどを防止することができ、良好な発電状態を継続することが可能となる。

また、燃料電池は排出気体が流れる排出流路を有するとしてもよく、 排出気体が酸素を含み燃料電池の酸素極側に供給されるとしてもよい。 10 排出気体が流れる排出流路を燃料電池が有していることで、排出気体と して燃料電池の外から空気を排出流路に送り込むことなどで、排出気体 を効果的に水分搬送体に接触させることができ、燃料電池内部の湿度を 適正な状態に維持することが容易となる。排出気体が酸素を含み、燃料 電池の酸素極側に供給されることで、排出気体を用いて燃料電池が発電 15 を行うことができるため、排出気体を有効に利用して発電を行うことが 可能となる。

また、水分搬送体がパーフルオロスルホン酸系ポリマーを含むとすることで、水分を水分搬送体によって確実かつ容易に搬送することができる。

5

請求の範囲

1. 少なくとも水素ガスが供給される第一の水素流路又は水素室と、 少なくとも水素ガスが供給される第二の水素流路又は水素室と、

前記第一の水素流路又は水素室と前記第二の水素流路又は水素室とを 5 分離すると共に水及び/又は水蒸気を通す水分搬送体と、からなること を特徴とする水素ガス湿度制御装置。

2. 前記水素ガスは、燃料改質により発生した水素ガスであることを特徴とする請求項1に記載の水素ガス湿度制御装置。

10

3. 少なくとも水素ガスが供給される第一の水素流路又は水素室と、 少なくとも水素ガスが供給される第二の水素流路又は水素室と、 前記第一の水素流路又は水素室と前記第二の水素流路又は水素室とを 分離するプロトン伝導体と、からなることを特徴とする水素ガス湿度制

15 御装置。

4. 前記プロトン伝導体は、前記第一の水素流路又は水素室に臨む面と前記第二の水素流路又は水素室に臨む面の少なくとも一方に触媒が配置されていることを特徴とする請求項3に記載の水素ガス湿度制御装置。

20

25

5. 前記第一の水素流路又は水素室に第一の電圧印加用電極を設けると共に、前記第二の水素流路又は水素室に第二の電圧印加用電極を設け、前記プロトン伝導体が前記第一の電圧印加用電極と前記第二の電圧印加用電極との間に挟持されていることを特徴とする請求項3に記載の水素ガス湿度制御装置。

- 6. 前記第一の電圧印加用電極と前記第二の電圧印加用電極との間に 電圧を印加することを特徴とする請求項3に記載の水素ガス湿度制御装 置。
- 5 7. 前記触媒は白金を含んでいることを特徴とする請求項4に記載の 水素ガス湿度制御装置。
 - 8. 前記水素ガスは、燃料改質により発生した水素ガスであることを特徴とする請求項3に記載の水素ガス湿度制御装置。

- 15 前記燃料が供給される水素流路及び/又は水素室に組み込まれた1個 又は2個以上の水素ガス湿度制御装置と、を備え、

前記水素ガス湿度制御装置は、第一の支持板と、第二の支持板と、前記第一の支持板と前記第二の支持板との間に挟持された水分搬送体とからなり、

- 20 前記第一の支持板に水素と水及び/又は水蒸気の混合気体が接しており、前記第二の支持板に少なくとも水素が接していることを特徴とする 燃料電池。
- 10. 燃料が供給される燃料電極側セパレータと、酸化剤が供給され 25 る酸化剤電極側セパレータと、前記燃料電極側セパレータと前記酸化剤 電極側セパレータとの間に挟持されたプロトン伝導体膜電極接合体と、

を有する1個又は2個以上の発電セルと、

前記燃料が供給される水素流路及び/又は水素室に組み込まれた1個 又は2個以上の水素ガス湿度制御装置と、を備え、

前記水素ガス湿度制御装置は、第一の電極と、第二の電極と、前記第 5 一の電極と前記第二の電極との間に挟持されたプロトン伝導体とからな り、

前記第一の電極に水素と水及び/又は水蒸気の混合気体が接しており、前記第二の電極に少なくとも水素が接していることを特徴とする燃料電池。

10

25

11. 第一の電極と、第二の電極とでプロトン伝導体を挟持し、

前記第一の電極と前記第二の電極との間に電圧を加えることにより、

燃料電池の燃料極に供給されて前記第一の電極に接触する水素と、前 記第一の電極に接触する水素とは異なる湿度を有し前記第二の電極に接 15 触する水素の間での水分の搬送を行うことを特徴とする水素ガス湿度制 御方法。

12. 燃料極と酸素極とで電解質を挟持した発電セルと、

前記酸素極に酸素を供給するための酸素流路が形成された酸素極側セ 20 パレータと、

前記燃料極に燃料ガスを供給するための燃料流路が形成された燃料極側セパレータと、

前記燃料ガスに接触して配され、前記燃料ガスとは異なる湿度を有する排出気体に接触し、前記燃料ガスと前記排出気体との間での水分の搬送を行う水分搬送体と、

を有することを特徴とする燃料電池。

- 13. 前記排出気体が流れる排出流路を有することを特徴とする請求項12記載の燃料電池。
- 14. 前記発電セルを複数有し、

前記水分搬送体が第一の発電セルと第二の発電セルとの間に配置され、

5 前記水分搬送体が接触する排出気体が酸素を含んで、前記第二の発電 セルの酸素極側に供給される

ことを特徴とする請求項12記載の燃料電池。

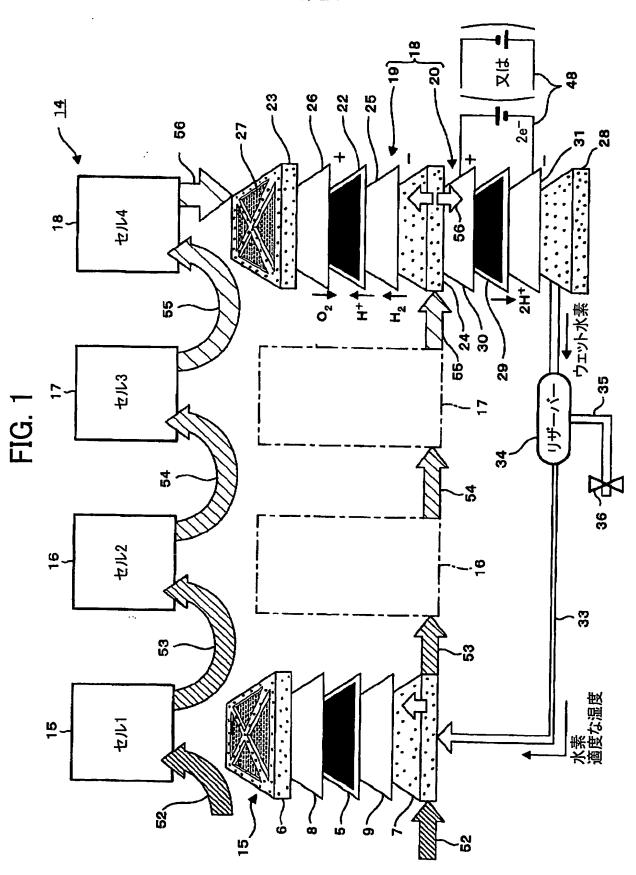
- 15. 前記水分搬送体は、パーフルオロスルホン酸系ポリマーを含むことを特徴とする請求項12記載の燃料電池。
- 10 16. 前記排出気体として当該燃料電池の外部に存在する大気を用いることを特徴とする請求項12記載の燃料電池。
 - 17. 燃料電池の燃料極側に供給される燃料ガスと接触するように水分搬送体を設け、

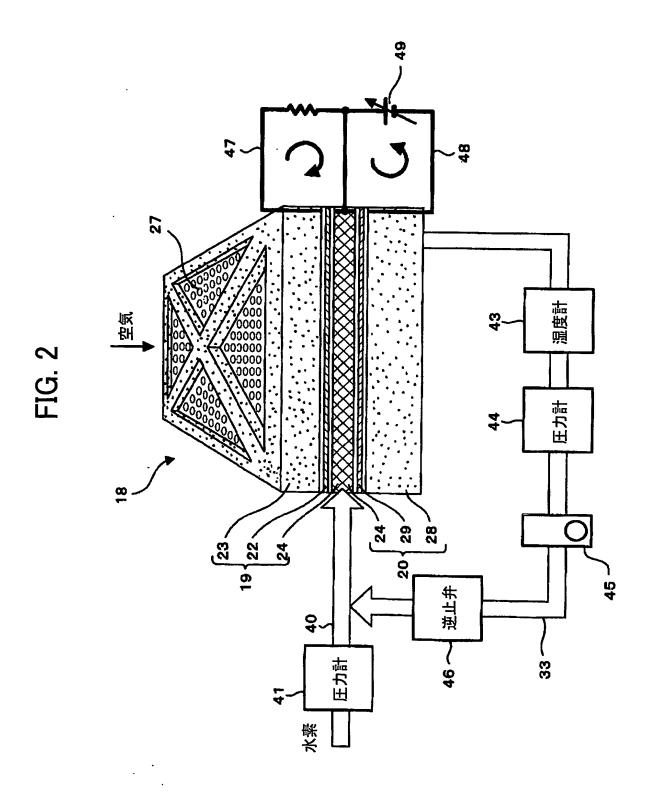
前記燃料ガスとは異なる湿度を有する排出気体および前記燃料ガスを 15 前記水分搬送体で隔て、

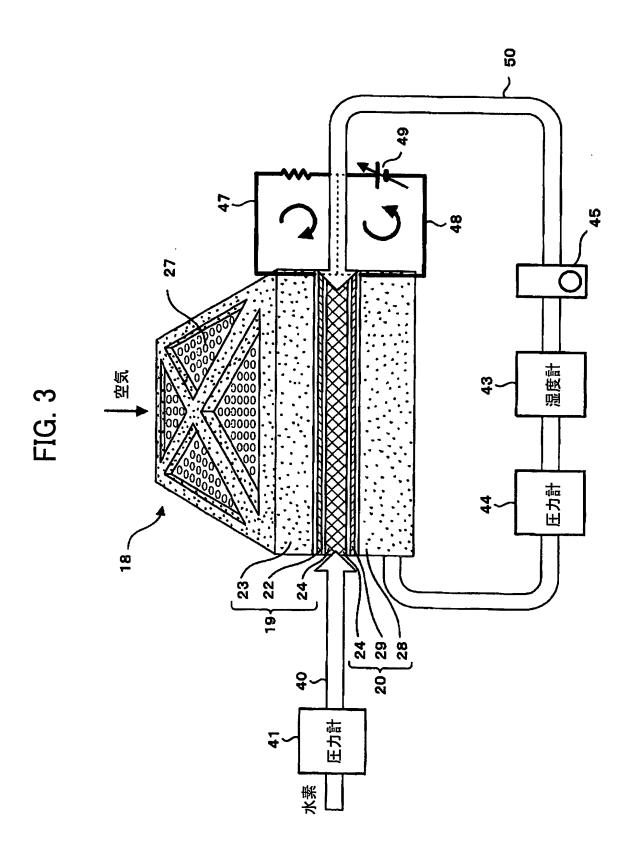
前記水分搬送体を用いて前記燃料ガスと前記排出気体との間で水分の 搬送を行うことを特徴とする燃料電池の湿度制御方法。

- 18. 前記排出気体が酸素を含み、前記燃料電池の酸素極側に供給されることを特徴とする請求項17記載の燃料電池の湿度制御方法。
- 20 19. 前記排出気体として当該燃料電池の外部に存在する大気を用いることを特徴とする請求項17記載の燃料電池の湿度制御方法。

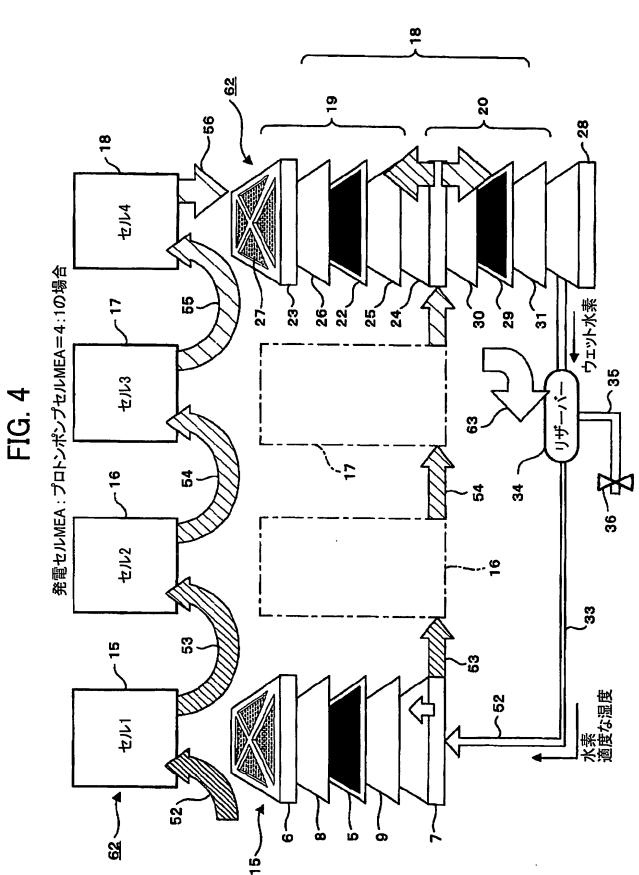




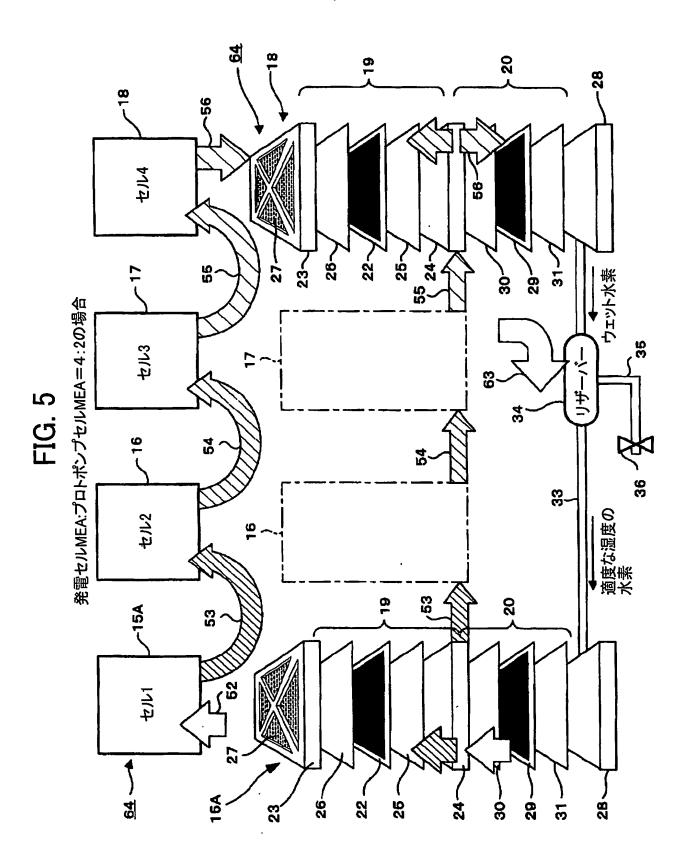




4/22



5/22



WO 2004/062016

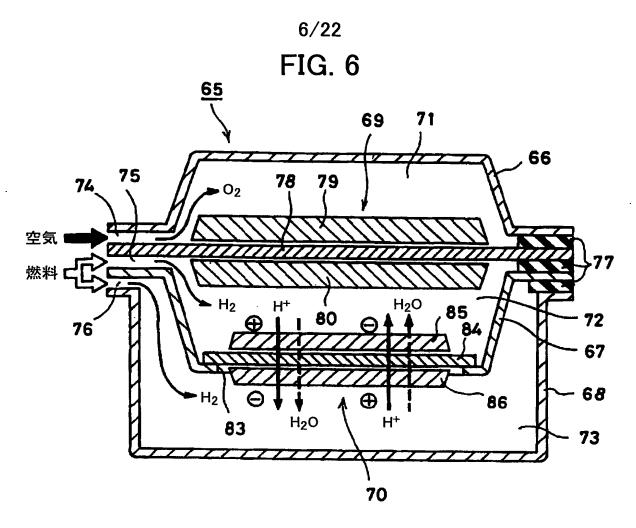
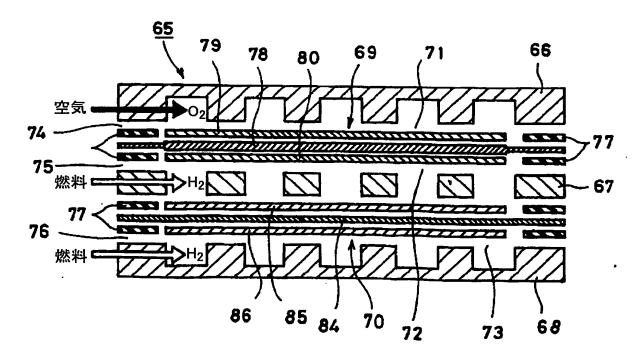


FIG. 7



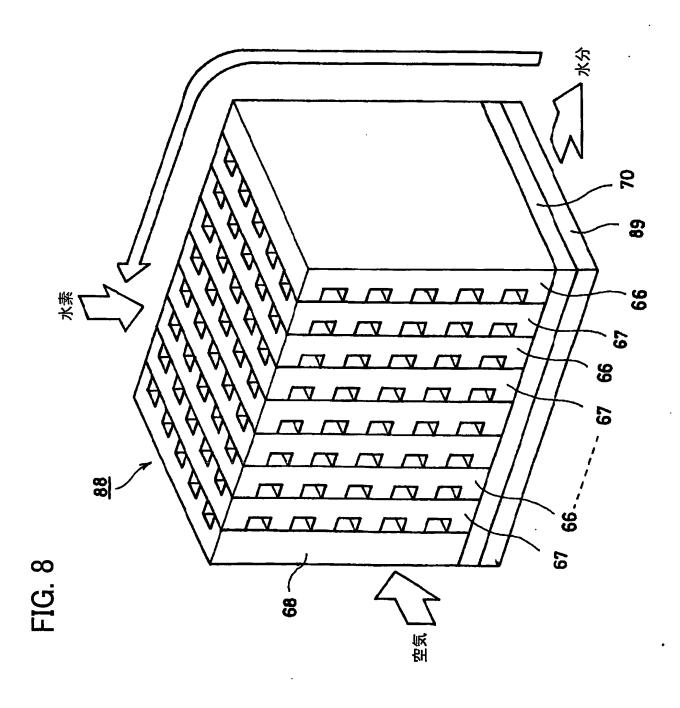
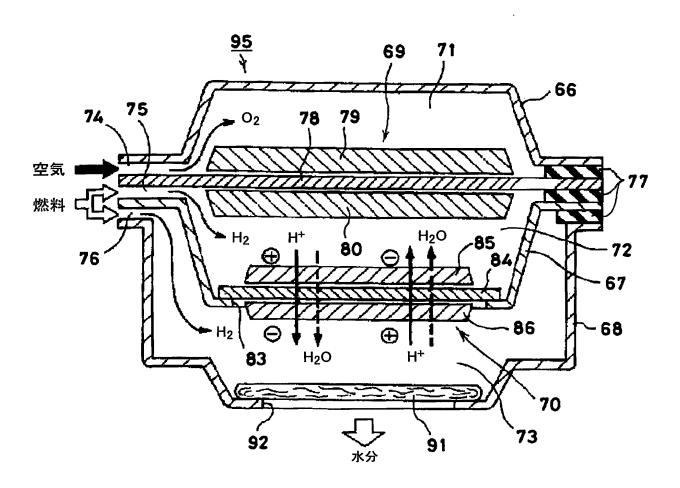
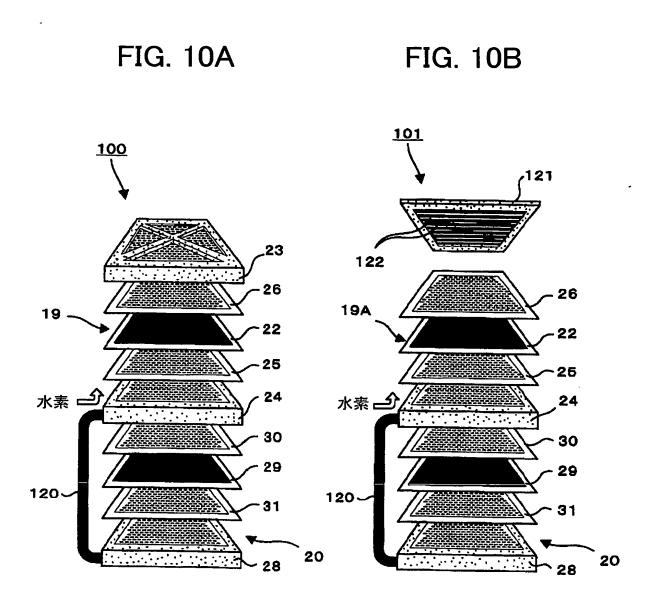


FIG. 9





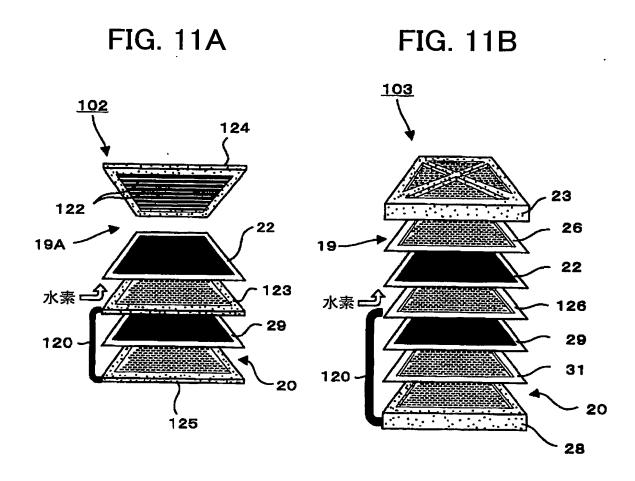
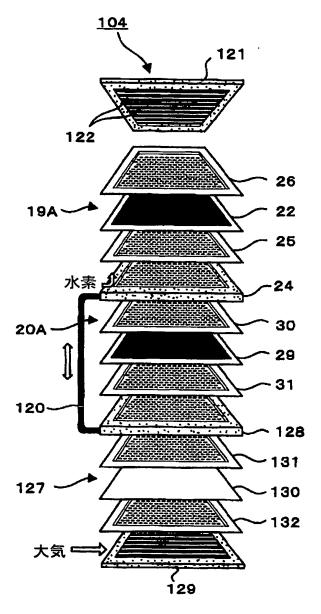
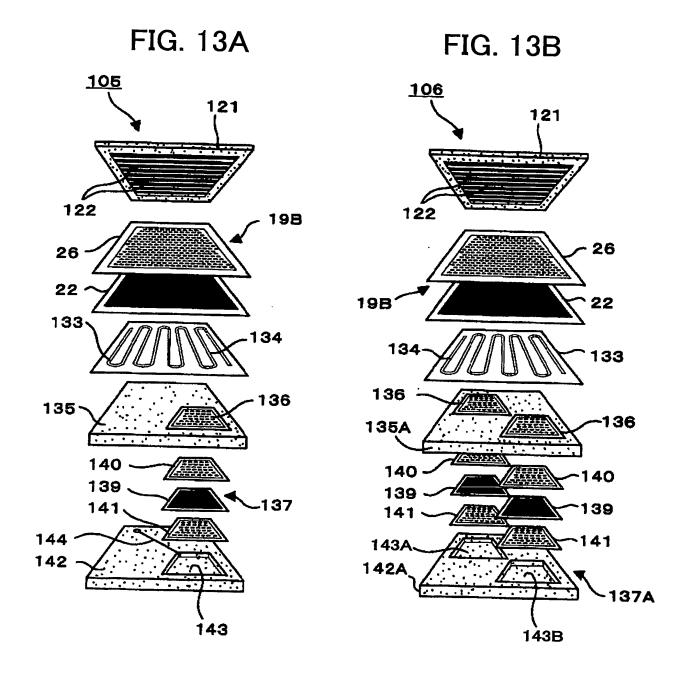
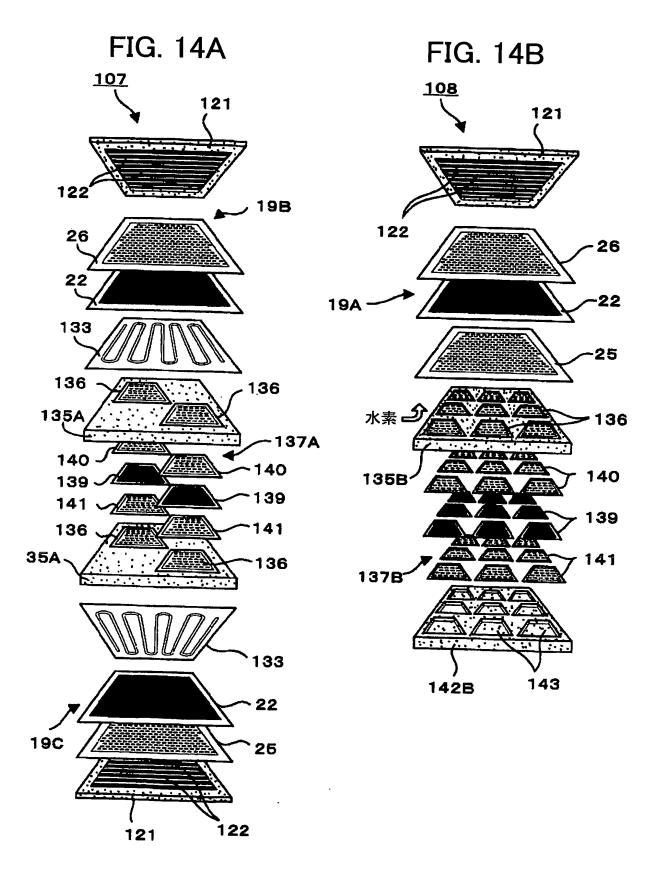
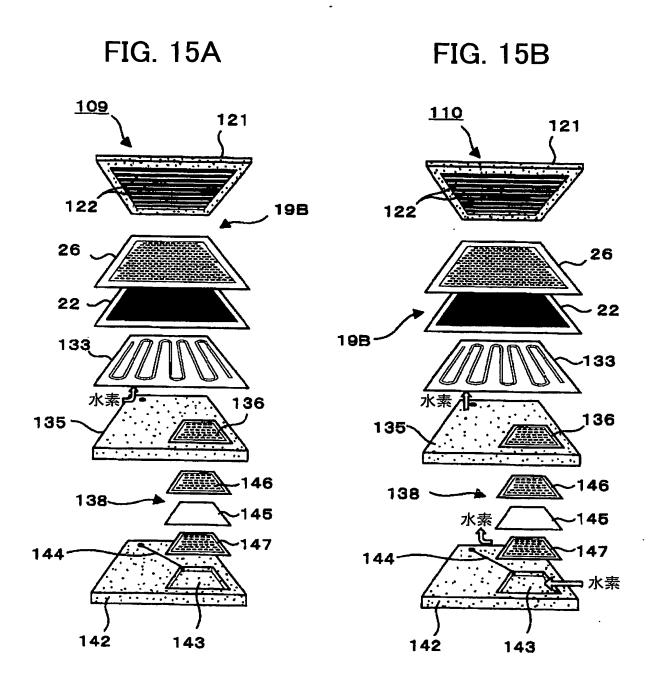


FIG. 12









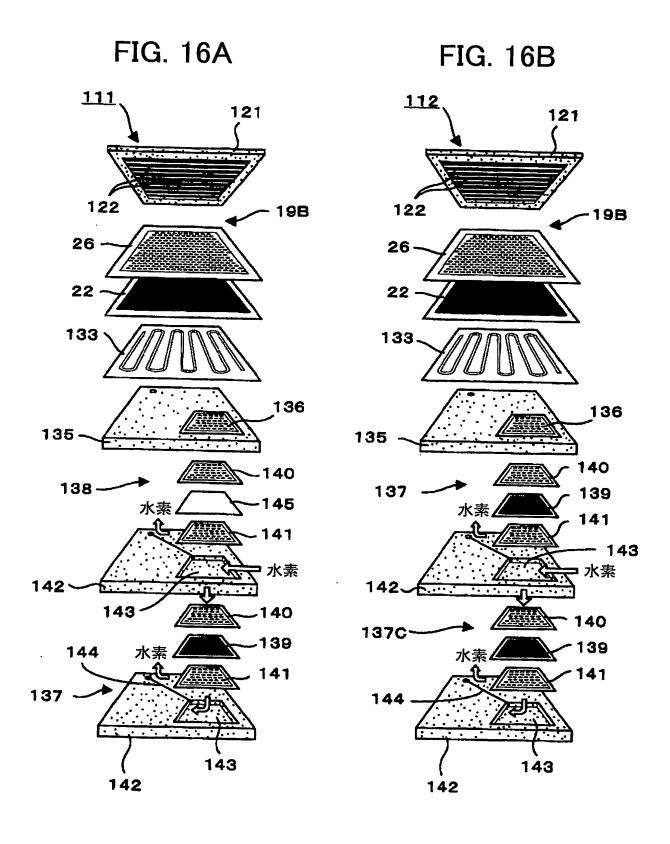


FIG. 17A

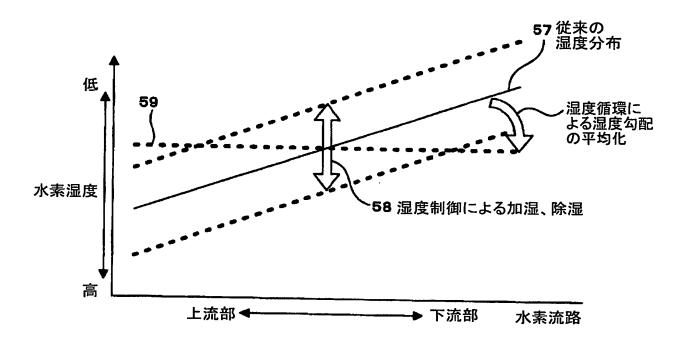


FIG. 17B

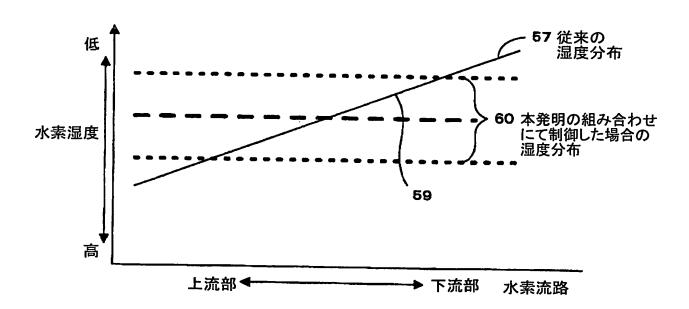


FIG. 18

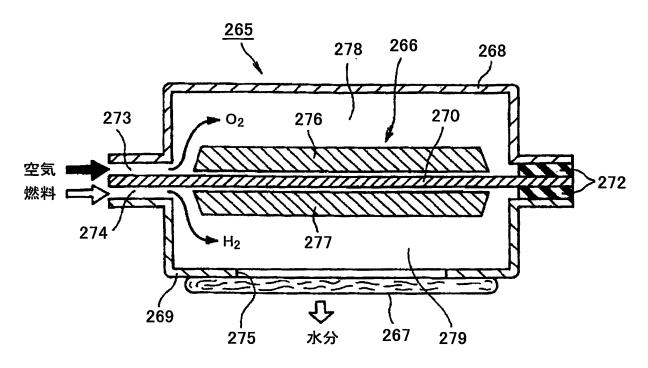


FIG. 19

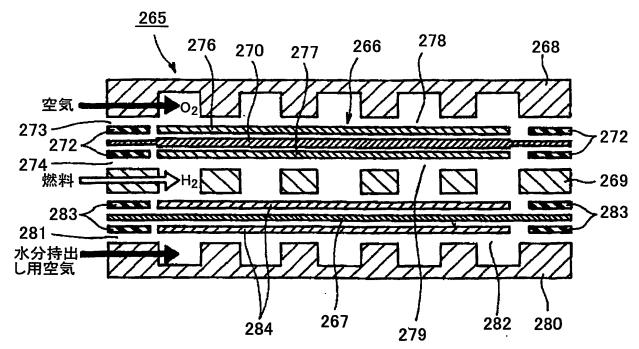
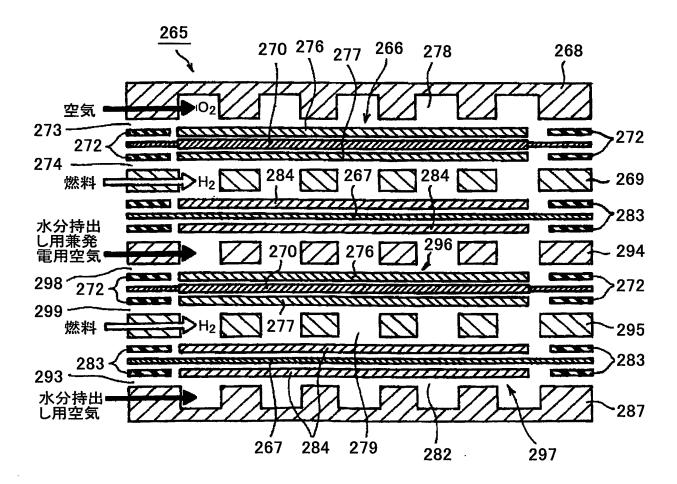


FIG. 20



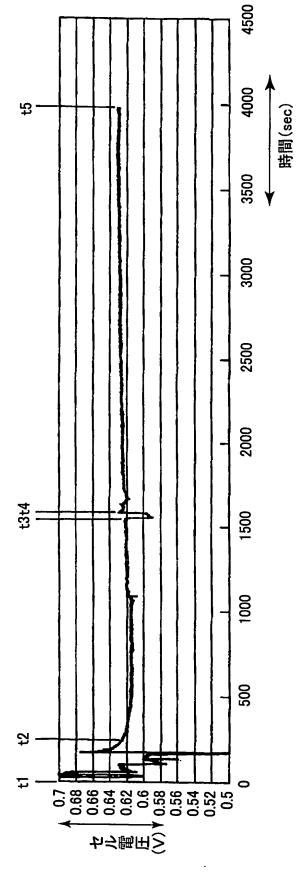


FIG. 21

20/22

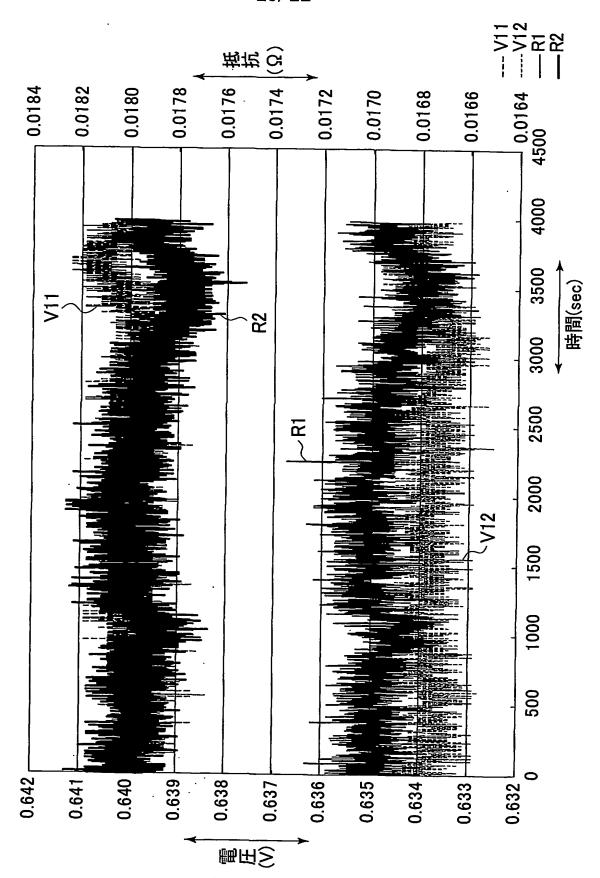
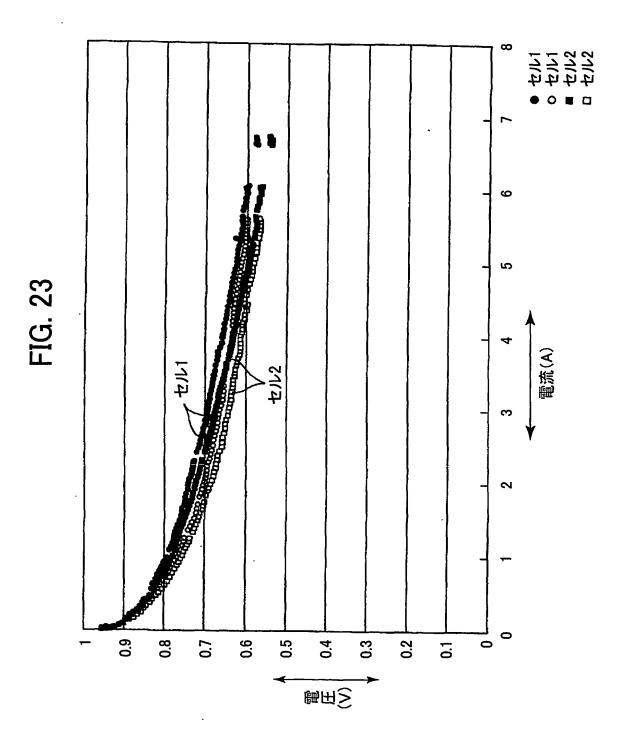
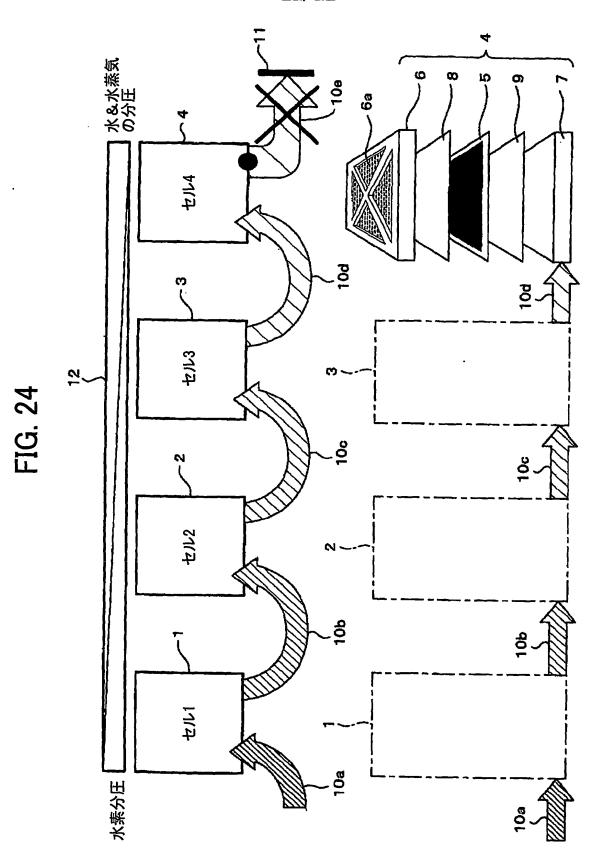


FIG. 22



22/22



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/15712

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ H01M8/04, H01M8/10					
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC					
B. FIELDS SEARCHED					
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ H01M8/04, H01M8/10, B01D53/32					
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922—1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994—2004 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971—2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996—2004					
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)					
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category* Citation of document, with indication, where a		Relevant to claim No.			
X JP 6-132038 A (Fuji Electri 13 May, 1994 (13.05.94), Y Full text; Figs. 1 to 2 (Family: none)	c Co., Ltd.),	1,3,9,12, 13,15,17 2,4-8,10,11			
X JP 2002-170584 A (Fuji Elec 14 June, 2002 (14.06.02), Full text; Figs. 1 to 3 (Family: none)	Full text; Figs. 1 to 3				
X JP 2001-216988 A (Honda Mot 10 August, 2001 (10.08.01), Y Full text; Figs. 1 to 6 (Family: none)	Full text; Figs. 1 to 6				
X Further documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.				
* Special categories of cited documents: document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art				
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family					
09 March, 2004 (09.03.04) 23 March, 2004 (23.03.04)					
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer				
Facsimile No.	Telephone No.				

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP03/15712

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No
Y	JP 6-89731 A (Fuji Electric Co., Ltd.), 29 March, 1994 (29.03.94), Full text; Figs. 1 to 6 (Family: none)	2,8
Y .	JP 8-138705 A (Toyota Motor Corp.), 31 May, 1996 (31.05.96), Full text; Figs. 1 to 10 (Family: none)	2,8
Y	JP 60-114325 A (Japan Storage Battery Co., Ltd.), 20 June, 1985 (20.06.85), Full text; Fig. 1 (Family: none)	4-8,10,11
Y	JP 61-216714 A (Japan Storage Battery Co., Ltd.), 26 September, 1986 (26.09.86), Full text; drawings (Family: none)	4-8,10,11
Y	JP 2-9413 A (Mitsubishi Electric Corp.), 12 January, 1990 (12.01.90), Full text; Figs. 1 to 4 (Family: none)	4-8,10,11
Y	JP 6-119931 A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 28 April, 1994 (28.04.94), Full text; Figs. 1 to 7 (Family: none)	. 14
Y .	JP 5-54900 A (Fuji Electric Co., Ltd.), 05 March, 1993 (05.03.93), Full text; Figs. 1 to 6 (Family: none)	18
Y .	JP 5-94832 A (Fuji Electric Co., Ltd.), 16 April, 1993 (16.04.93), Full text; Fig. 1 (Family: none)	18
	·	

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1998)

発明の属する分野の分類(国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' H01M 8/04, H01M 8/10

調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01M 8/04, H01M 8/10, B01D53/32

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2004年

日本国登録実用新案公報 1994-2004年

日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献					
引用文献の		関連する			
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号			
X	JP 6-132038 A(富士電機株式会社)1994.05.13,全文,【図1】~	1, 3, 9, 12,			
37	【図2】(ファミリーなし)	13, 15, 17			
Y		$2,4 \sim 8,10$			
· .	•	,11			
X	JP 2002-170584 A(富士電機株式会社)2002.06.14,全文,【図1】~	1, 3, 9, 12,			
	【図3】(ファミリーなし)	13, 15, 16, 17,			
Y	·	19			
· -		$2, 4 \sim 8, 10$			
		, 11, 14, 18			

|X|| C欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献 (理由を付す)
- 「O」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 国際調査報告の発送日 23. 3. 2004 09.03.2004 国際調査機関の名称及びあて先 特許庁審査官(権限のある職員) 源 4X 8414 日本国特許庁(ISA/JP) (),即() 小川 進 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3581-1101 内線 3477

		ENDER OF TOTAL			
C (続き).	関連すると認められる文献				
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときに	関連する 請求の範囲の番号			
X	JP 2001-216988 A(本田技研工業株式会社)2001.08.10,全文,【図1】~【図6】(ファミリーなし)		12, 13, 16, 17,		
Y			19 18		
Y	JP 6-89731 A(富士電機株式会社)1994.03 6】(ファミリーなし)	2,8			
Y .	JP 8-138705 A(トヨタ自動車株式会社)1996.05.31,全文,【図1】 ~【図10】(ファミリーなし)		2,8		
Y	JP 60-114325 A(日本電池株式会社)1985.06.20,全文,第1図(ファミリーなし)		4~8,10,11		
Υ .	JP 61-216714 A(日本電池株式会社)1986. リーなし)	4~8,10,11			
Y	JP 2-9413 A(三菱電機株式会社)1990.01. (ファミリーなし)	4~8,10,11			
Y	JP 6-119931 A(三菱重工業株式会社)1994 【図7】(ファミリーなし)	. 04. 28, 全文, 【図1】~	14		
Y	JP 5-54900 A(富士電機株式会社)1993.03 6】(ファミリーなし)	. 05, 全文, 【図1】~【図	18		
Y	JP 5-94832 A(富士電機株式会社)1993.04 ミリーなし)	. 16, 全文, 【図1】(ファ	18		
		,			
		1			
		·			